

650°C—900°C区间单晶硅塑性区的直接观察

李燮均 曾文光

(物理学系)

摘 要

采用三点弯曲加载方法观察细切口单晶硅试样在650°C—900°C温度区间的塑性区,其形状呈蝴蝶形,与结晶学取向密切相关。测定了由位错蚀坑所排成的最长那条滑移线长度及其与应力、温度的关系,进而计算了位错增殖和运动的阻力 τ_0 ,结果表明,塑性区大小基本上与切口顶端应力平方成正比,而与温度、 τ_0 的关系较为复杂。温度和 τ_0 都是影响塑性区大小的敏感量。

一、引 言

关于塑性区的研究,在弹塑性力学范围内已有大量理论工作。但对塑性区进行直接观察的工作还不多。1965年G.T.Hahn等用腐蚀方法观察了Fe—3Si裂纹顶端的塑性区⁽¹⁾,结果与弹性理论符合得很好⁽²⁾。1975年C.St.John用x射线形貌技术观察了800—850°C硅裂纹前沿塑性区⁽³⁾,结果表明它与晶体取向、滑移系统相联系。为了进一步确定塑性区形状、大小与温度和应力的关系,我们采用平面应变状态下(900°C时未验证是否属平面应变)三点弯曲的方法,进行实验研究。

二、实 验 方 法

和通常断裂韧性试验中测定 K_{Ic} 时所用的试验装置一样,采用ASTM E-399-74所推荐的加载系统,所不同的只是试样及与试样接触的部件按比例缩小,而且后者均由石英制成。两支承石英辊平行放置于石英管的顶槽上,该石英管底通入氩气以防止试样高温氧化。试样置于自制加热炉中,炉内温度由温度控制器控制,整个加载期间温度变化小于 $\pm 2^\circ\text{C}$ 。

试样是广州半导体器件厂提供的直拉N型单晶硅,生长方向为 $\langle 111 \rangle$,方块电阻小于 25Ω ,原生位错密度小于 500cm^{-2} 。依试验温度,用内园切片将试样切成 $(2.5\sim 3.0) \times (5.0\sim 10.0) \times 30\text{mm}^3$ 的长方体。在每个试样的长度中点,用薄砂轮片预切一小口,

本文1982年12月收到。马吉南、赵红一、张兆春、陈观中、林志成和王丽云等参加了部分实验工作。

其曲率半径小于0.14mm。试样经砂纸磨光后,在HF:HNO₃:CHCOOH = 3:5:3的抛光液中抛光,再用HF:标准液(50克CrO₃+100克H₂O) = 1:1的腐蚀液腐蚀,观察原生位错或其它缺陷的分布。用直径为0.05mm的钨丝或铂丝浸渍进口304*金刚砂在已有的切口上拉磨出深度为原切口曲率半径四倍左右的细切口,它的曲率半径ρ<0.04mm。切口总长度a及曲率半径ρ均用精度为0.001mm的工具显微镜测出。试样宽度B、高W及跨距S用游标尺测出。不同取向试样的外形及取向如图1所示。

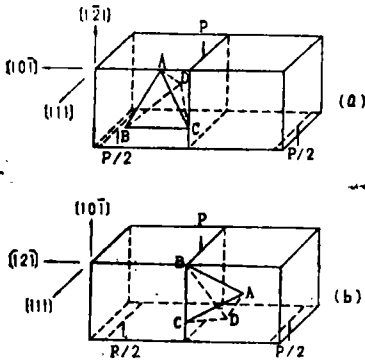


图1 试样取向

- (a)中ACD面与(101)面间夹角θ = 35°16', CA即(110)与(121)夹角30°
- (b)中ACD面与(121)面间夹角θ = 61°52', CA即(110)与(101)夹角60°

试样被加热到预定温度并恒温10分钟后,开始加载,载荷由与石英压头相联并有流动水冷却的应力传感器送到动态应变仪放大,再输入X—Y记录仪读出。这个系统每次使用前均经校正,读数偏差小于0.09kgf。加载速度为23.6kgf/min。压头位移量Δ由LVD—5位移传感器输入X—Y记录仪。加载到预定载荷后,保持载荷五分钟,再卸载,待炉温降至550℃后取出试样,于上述腐蚀剂中腐蚀5~10分钟(视新、旧液而定)。用金相显微镜测定蚀坑所排成的最长那条滑移带长L。反复对同一试样于同一温度下重复上述试验,直至出现大量蚀坑为止。用SEM观察测量面及细切口内顶端的特征。用逐次磨薄方法抽检这种显出蚀坑的位错的深度,表明两个面都在0.3mm以上。L上单位长度蚀坑数在本实验温度范围内由照片读出为(18±3)个/mm。

在载荷为p时,切口顶端应力及K₁已有现成计算公式,它们是^[4,5]:

$$\sigma_F = 2 \cdot \sigma \left(\frac{a}{\rho} \right)^{\frac{1}{2}}, \tag{1}$$

$$\sigma = \frac{3}{2} \frac{P \cdot S}{B(w-a)^2}, \tag{2}$$

$$\tau_F = \sigma_F \cos \lambda \cos \phi = \sigma_F \cdot \Omega. \tag{3}$$

本试验的两种取向中,Ω都为0.408。

$$K_1 = \frac{P \cdot S}{4Bw^{3/2}} \cdot F \left(\frac{a}{w} \right). \tag{4}$$

由上面这些式子可以得到

$$K_1 = Y \cdot \tau_F, \tag{5}$$

其中
$$Y = \frac{1}{12\Omega} \frac{(w-a)^2}{w^{3/2}} \sqrt{\frac{\rho}{a}} \cdot F \left(\frac{a}{w} \right),$$

而
$$F \left(\frac{a}{w} \right) = \left[7.31 + 0.21 \sqrt{\frac{s}{w} - 2.9} \right] \sec \left(\frac{\pi a}{2w} \right) \sqrt{\operatorname{tg} \left(\frac{\pi a}{2w} \right)}.$$

Y完全由试样几何因素及取向因子所决定。

三、结果与讨论

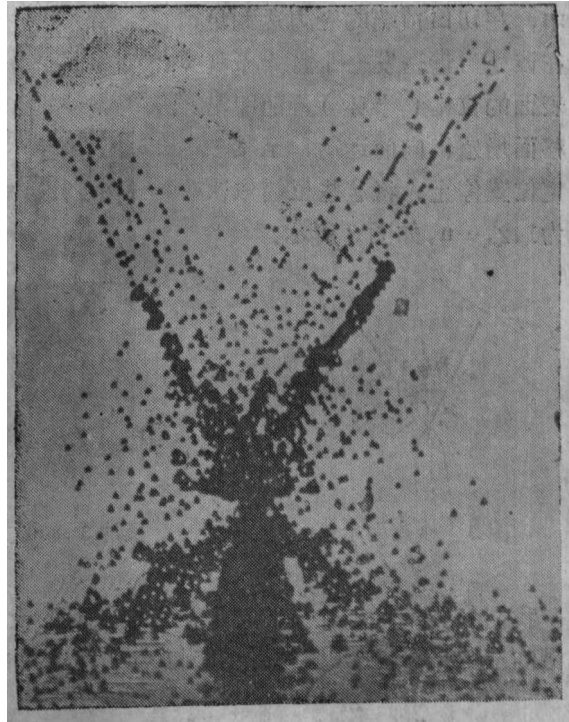
1. 塑性区的形状

在750—900°C下按上述条件进行试验,所观察到的由位错蚀坑所排成的图样,即塑性区形状,均呈蝴蝶形(照片1)。不同取向的试样,张角不同,如图1(a)取向的试样,张角为 $60^{\circ}\pm 3^{\circ}$;如图1(b)取向的试样,张角为 $120^{\circ}\pm 3^{\circ}$ 。这表明塑性区的形状与结晶学取向密切相关,最长伸展方向之间夹角不一定与裂纹面成 $\pm 70^{\circ}$ ⁽⁶⁾。最小的塑性区深度,即蚀坑图案中最短者,是在裂纹面延长方向。还有向后的两个短翼,它们所组成的蚀坑图样向后的最长伸展方向,与滑移线方向不一致(照片1),这可能是切口两岸自由边界的应力状态影响所致。

为了便于讨论,图1中仍以f·c·c结构来标记晶面和晶向。由图可见,上述塑性区的最长伸展方向之间夹角即张角,正好与相应取向试样的两个等效滑移面与观察面交线的夹角相符;CA是其中一条所观察到的最大深度方向,它与切口面和观察表面交线的夹角,从结晶学结果已知,图1(a)为 30° ,图1(b)为 60° 。试验结果有 $\pm 3^{\circ}$ 偏差,可能是加工精度不够引起的(用激光光象法定向)。

在650°C进行上述试验,没有得到较大的塑性区。有一个试样出现过几个蚀坑,随后增加载荷时(p由4.40kgf增至8.50kgf,分四次)也只增加两个蚀坑,最后于8.56kg的p值下断裂。另外的试样则没有观察到蚀坑,而是形成微裂纹断裂。这是平面应变受力状态下脆断倾向增大的结果,与晶丝或小块晶片纯弯试验时450°C下仍可显现屈服效应⁽⁷⁾并不矛盾。

用SEM观察切口内顶端,可以发现在650—900°C区间内的试样,均有位错蚀坑。不同温度下,这些蚀坑的形态不同。它们可能是在打磨细切口过程中的残余应力所引起的。在后继的加载过程中,由于温度不同,位错增殖、运动程度不同,便形成不同形态。低温时(如650°C)蚀坑主要集中在切口中部,且有长条状小沟(照片2)。这说明即使由于残余应力引入位错源,要增殖、运动到观察表面也是非常困难的,而以微裂



照片1 蚀坑图样 840°C图1(a)取向 100x

纹方式松弛应力更为有利。温度较高时,则蚀坑较为圆滑(照片3),以致呈纤维状。这从形貌上反映了温度愈低,塑性愈差。

2. 塑性区大小与应力的关系

在由蚀坑带所显现的各滑移线中,我们用最长那条的长度 L 来表征塑性区的大小。

我们试验用的所有试样,在观察面上都没有发现原生位错蚀坑。外载荷不大时,也观察不到蚀坑。因此,可以认为,在外载荷达到一定数值之后,由于应力集中,在切口顶端的应力达到足以在该处附近诱发一个露头于观察表面的位错(半环),随即沿滑移面增殖,向前运动,至某一确定位置停止。将这些位错依次记为 $1, 2, \dots, n$,如图2所示。

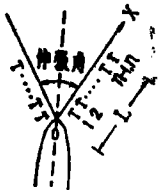
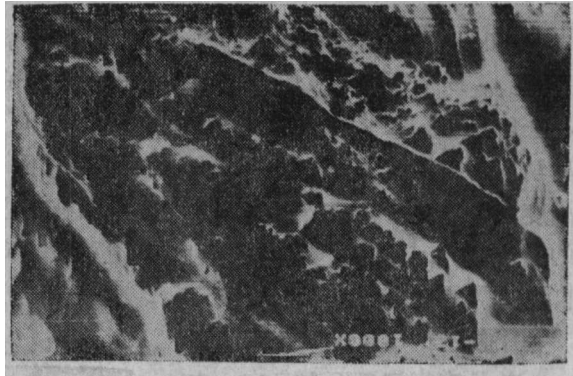


图2 观察面示意图



照片2 650°C试样切口底SEM 750x



照片3 800°C试样切口底和观察面交界处 SEM 975x

我们分析第 n 个位错在趋于平衡位置时的受力情况。以切口顶端为座标原点,各个位错的位置用 x_i 表示,其它位错对第 n 个位错的作用力为:

$$\sum_{i=1}^{n-1} \frac{Ab}{x_n - x_i}$$

其中, $A = \frac{\mu b_0}{2\pi k} = \frac{\mu b_0}{2\pi} \left[\cos^2 \phi + \frac{\sin^2 \phi}{1-\nu} \right]$, 对硅, $\phi = 60^\circ$, 取 $\mu = 6.84 \times 10^3 \text{ kgf/mm}^2$,

$b_0 = 3.34 \text{ \AA}$, $\nu = 0.215$, 则 $2A = 8.64 \times 10^{-3} \text{ kgf/cm}$ 。

外载荷对第 n 个位错的作用力记为 $\tau_n \cdot b$, 它和其它位错对第 n 个位错的力都使位错 n 向前增殖、运动。第三个力记为 $\tau_0 \cdot b$, 它是包括点阵摩擦阻力, 氧、氢气团钉扎力等在内的阻碍位错 n 向前增殖、运动的总阻力。当上述三个力的代数和大于0, 位错向前增殖、运动; 若趋于0, 表示接近平衡位置, 这即上面提到的“确定位置”。平衡时有

$$\sum_{i=1}^{n-1} \frac{Ab}{x_n - x_i} + \tau_n \cdot b - \tau_0 \cdot b = 0, \text{ 或}$$

$$\sum_{i=1}^{n-1} \frac{A}{x_n - x_i} - (\tau_0 - \tau_n) = 0.$$

当n较大时, 借用位错塞积的数学方法, 便可得到

$$L = x_n \simeq \frac{2A \cdot n}{(\tau_0 - \tau_n)}. \tag{6}$$

在我们的实验条件下, 第一个蚀坑离切口顶不远, 蚀坑分布比较均匀, 因此可用单位长度蚀坑数 n_0 与观察面上蚀坑带长之积来表示n: $n = n_0 L$. 如前述, $n_0 = (18 \pm 3)$ 个/mm, 对全部试验试样, 可以看作常数, 这样, (6)式中的 τ_n 在一定温度下也可认为是常数(其意义见下面讨论). 由于 ρ 很小, 可以忽略缺口应力场表达式中 $\frac{\rho}{2x_n} f(\theta)$ 一项^[6]; 由于试验中除个别试样的个别次试验外, 几乎全部试样的每次 $p-\Delta$ 曲线都呈弹性, 在 $2a$ 较 L 大得多时, 仍采用下式计算滑移面上各点的切应力。(虽然图1中两种取向试样的ACD面与观察面不垂直, 但相差甚小, 下式也没有表出).

$$\tau_n = \frac{K_1}{(8\pi x_n)^{1/2}} \sin\theta \cos \frac{\theta}{2}; \quad x_n = L \tag{7}$$

由(5)、(6)式又得到

$$L = \frac{K_1^2 \sin^2 \cos^2 \frac{\theta}{2}}{8\pi(\tau_0 - 2An_0)^2} = \frac{\sin^2 \theta \cos^2 \frac{\theta}{2}}{8\pi} \cdot Y^2 \cdot \frac{\tau_F^2}{\tau_n^2} = \begin{cases} 0.012Y^2 \frac{\tau_F^2}{\tau_n^2} & \theta = 35^\circ 16' \\ 0.023Y^2 \frac{\tau_F^2}{\tau_n^2} & \theta = 61^\circ 52' \end{cases} \tag{8}$$

图3是一些试样的实验点与按(8)式计算的曲线的比较。当 L 较大时, 按(8)式计算偏离实验点甚大, 图中不再画出, 这些结果留作另文讨论。

由(8)式可见, 在一定温度下, 对于给定试样, 塑性区大小基本上与外加应力平方成比例; 对于裂纹或细切口试样, 则基本上与应力强度因子 K_1 的平方成比例。假若平面应变要求能被满足, 当 K_1 趋于 K_{Ic} 前瞬间, L 达最大值。

(8)式还给出能测定 L 和 n_0 的晶体, 按常规测定 K_{Ic} 的实验方法, 确定 τ_0 的关系式。

3、塑性区大小与温度的关系

上面提及, 在一定温度下, τ_n 有一定的值。我们的实验是直接测定 L , 由(7)式计算 τ_n , 由(6)计算 τ_0 。由实验结果可知, 一定的 K_1 就有确定的 $L = x_n$, 因而 τ_n 表示了位错增殖、运动到 x_n 处时, 由外载荷提供的在 x_n 处的切应力, 小于它, 位错便不能向前移动。显然, 它与位错能否继续运动有关, 因而与温度关系密切。由于保载时间较长, 试验中可以认为在降温之前位错组态已经确定。这样, 由图4可以得到同一温度下各实验点的平均值与温度的关系:

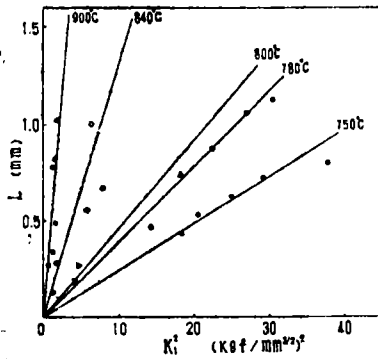


图3 L~K₁关系图。

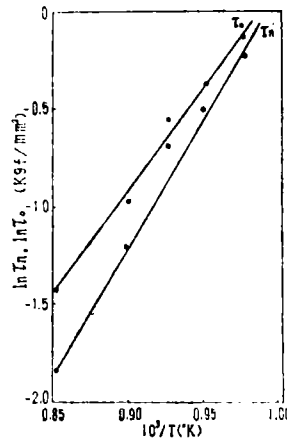


图4 τ_o, τ_n 与温度的关系。实验点为平均值。

$$\overline{\tau_n} = 2.5 \times 10^{-6} e^{13 \left(\frac{10^3}{T} \right)}, \quad (\text{kgf/mm}^2) \quad (9)$$

同理，由(6)式，参见图4有：

$$\overline{\tau_o} = 3.1 \times 10^{-5} e^{10.5 \left(\frac{10^3}{T} \right)}, \quad (\text{kgf/mm}^2) \quad (10)$$

式中的T均指绝对温度。

应该说明， τ_n, τ_o 都是指观察面上已经出现蚀坑而言的。前面已经提及，在一定温度下加载，小于某一应力时，观察面上并不出现蚀坑。在800°C以下加载，由于应力不够大，有的试样加卸载五次也看不到一个蚀坑；而在900°C下加载，不大的应力就可以出现0.16mm的蚀坑排。这说明低温下阻碍位错运动增殖、运动的力 $\tau_o b$ 大。在所试验的几个温度下，试样第一次能在观察面上观察到蚀坑的应力 τ_{F1} ，取平均值分别为：900°C下3.0kgf/mm²，840°C下6.0kgf/mm²，800°C下10kgf/mm²，780°C下13kgf/mm²，750°C下16kgf/mm²，可见， $\tau_n, \tau_o, \tau_{F1}$ 对温度都非常敏感。 τ_{F1} 即与通常的屈服应力相当。

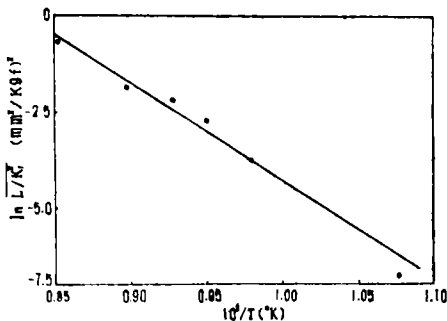


图5 $\overline{\ln L/K_1^2} \sim 10^3/T$ 关系。其中650°C 的点是一个试样的估计值。

位错露头于观察表面及其以后的增殖、运动到某一位置，从而表现为一定的L这一全过程，看作是位错翻越势垒的结果，我们将实测的L和K₁值进行直接计算，计算时对不同取向的试样进行取向因子归一化处理，从而得到图5的 $\overline{\ln L/K_1^2} \sim \frac{10^3}{T}$ 关系；

在出现露头于观察面的位错之后，由(6)式的应力条件，由于增殖、运动，原有的位错走开了，又在切口顶端附近重新产生新的位错。温度愈高，这种过程愈容易进行，L愈大。由(8)式直接可以看出，在一定的K₁之下，温度对L的影响由 τ_n^{-2} 即 $(\tau_o - 2An_o)^{-2}$ 表出，由(9)式便可得到 $L/K_1^2 \sim \frac{10^3}{T}$ 的关系。为了便于比较，我们将上述的

位错露头于观察表面及其以后的增殖、运动到某一位置，从而表现为一定的L这一全过

$$\left(\frac{L}{K_1^2}\right) = 3.5 \times 10^9 e^{-2.27ev/kT} \quad \left(\frac{mm^2}{kgf}\right)^2 \quad (12)$$

式中k为Boltzmann常数。

进一步, 如将(12)式的 L 、 K_1 、 T 都看作连续变量, 则由(12)式的关系还可得到

$$L = L_0 \left(\frac{K_1}{K_0}\right)^2 e^{-2.27ev/kT} \quad (12)'$$

两边用过程的时间去除, 则为过程的平均速度, 它和 Gilman 公式 $v = v_0(\tau/\tau_0)^m e^{-U/kT}$ 具有相同的形式, 只是 m 、 U 值都稍高一些而已。由于我们的实验方法与以往测定位错运动速度从而确定 m 、 U 的方法很不相同, 以及试样中气体含量、杂质影响可能不同, 结果的差异是合理的。这说明了塑性区的大小是和位错的出现及其增殖、运动所翻越的势垒相关这一物理过程。在我们的试验温度范围内, 从650°C开始, 随着温度升高, 塑性区增大; 780°C以后, 则急剧增大, 上述过程的激活能为2.2~2.3eV。

四、结 论

1、三点弯曲加载细切口试样的单晶硅, 其塑性区呈蝴蝶形。不同取向的试样, 于观察面上所测到的塑性区最大伸展方向之夹角, 符合结晶学取向之角度。

2、在一定温度下, 塑性区大小基本上与切口顶端应力平方成正比; 在一定应力下, 对于裂纹体或细切口试样则在一定 K_1 下, 它与温度关系大致上可由(12)式表出。780°C以上, 塑性区急剧增加; 650°C下难于形成蝴蝶形塑性区。

3、位错运动阻力 τ_0 是影响塑性区大小的材料内在因素, 它与温度的关系可由(10)式表出。

参 考 文 献

- [1] G.T.Hahn et al., *Acta Met.*, 13 (1965), 293.
- [2] R.W.Hertzberg, *Deformation and Fracture Mechanics of Engineering Materials*, John Wiley and Sons, Inc., (1976), 273.
- [3] C. St. John, *Phil. Mag.*, 32 (1975), 1193.
- [4] Errol B. Shand, *J. American Ceramic Society*, 48 (1965), 43.
- [5] 陈旻等, 金属断裂研究文集, 科学出版社, (1978), 24.
- [6] 陈旻等, 工程断裂力学(上册), 国防工业出版社, (1977), 86, 52.
- [7] G. L. Pearson et al., *Acta Met.*, 5 (1957), 181.

Direct Observation of Plastic Zone in Single Silicon Crystal in the Temperature Range from 650°C to 900°C

Li Xiejun Zeng Wenguang

Abstract

Using three point bending method, the plastic zone of the notched single silicon crystal in the temperature range 650°C to 900°C was studied. The influences of temperature and stress on the plastic zone were measured. The resistance and the activation energy of the dislocation movement and multiplication were calculated. A butterfly-like plastic deformation zone was observed on the surface of the specimen. The shape of plastic zone depends on the crystallographic orientation obviously, and the size of plastic zone almost varies with the square of shear stress on the notched tip. The influences of The temperature and the resistance of dislocation movement and multiplication were in more complex manner. The activation energy of the dislocation movement and multiplication is 2.2—2.3eV.