

나노 압입곡선의 이론적 분석을 통한 박막의 잔류응력 평가

이윤희* · 장재일** · 권동일†

(2001년 7월 24일 접수, 2002년 4월 13일 심사완료)

Evaluation of Thin Film Residual Stress through the Theoretical Analysis of Nanoindentation Curve

Yun-Hee Lee, Jae-il Jang and Dongil Kwon

Key Words : Nanoindentation Technique(나노 압입시험), Thin Film Residual Stress(박막 잔류응력), Indentation Load-Depth Curve(압입하중-변위곡선), Contact Morphology(접촉 형상), Load Controlled-Stress Relaxation(압입하중 제어 응력완화)15

Abstract

Residual stress is a dominant obstacle to efficient production and safe usage of device by deteriorating the mechanical strength and failure properties. Therefore, we proposed a new thin film stress-analyzing technique using a nanoindentation method. For this aim, the shape change in the indentation load-depth curve during the stress-relief in film was theoretically modeled. The change in indentation depth by load-controlled stress relaxation process was related to the increase or decrease in the applied load using the elastic flat punch theory. Finally, the residual stress in thin film was calculated from the changed applied load based on the equivalent stress interaction model. The evaluated stresses for diamond-like carbon films from this nanoindentation analysis were consistent with the results from the conventional curvature method.

기호설명

- | | |
|--------------------------------------|----------------------------------|
| σ_{res} : 박막의 면내 등방향 잔류응력 | h_i^T : 인장응력 상태의 L_0 대응 압입깊이 |
| L_{max} : 최대 인가 압입하중 | h_i^C : 압축응력 상태의 L_0 대응 압입깊이 |
| L_0 : 인가 압입하중(분석하중) | h_n : 인장응력 영향에 의한 sink-in 깊이 |
| L_{res} : 잔류응력 유도 수직하중 | h_p : 잔류응력 영향에 의한 pile-up 높이 |
| h_{max} : 최대 압입하중 인가시 압입깊이 | A_c : 실제 압입자와 시편 접촉면적 |
| h_f : 하중 제거 후 압입깊이 | a_{eff} : 원형 평면펀치의 유효 접촉반경 |
| k : 하중 제거곡선 power law fitting 시 상수 | E_r : 압입자와 박막의 환산탄성계수 |
| m : 하중 제거곡선 power law fitting 시 상수 | E : 박막의 탄성계수 |
| S : 최대 압입하중시 하중제거곡선 기울기 | ν : 박막의 Poisson 비 |
| h_c : 실제 접촉깊이 | |
| h_s : 접촉영역 주위의 탄성굽힘 깊이 | |
| h_t : 무응력 상태의 L_0 대응 압입깊이 | |

1. 서론

증착박막 및 용접, 브레이징(brazing) 등의 방법으로 제조된 이중 접합재는 불연속적인 계면의 존재와 제조과정 중의 열이력으로 잔류응력을 갖게 되며, 기계가공이나 샷피닝(shot peening) 등의 불균

* 회원, 서울대학교 대학원 재료공학부
** 회원, ㈜ 프론틱스 연구개발부
† 책임저자, 회원, 서울대학교 재료공학부
E-mail: dongilk@gong.snu.ac.kr
TEL : (02) 880-7104 FAX : (02) 889-4380

일한 소성변형에 의해서도 잔류응력이 발생한다. 슛피닝과 같은 표면 압축응력 인가를 통해 표면 균열 발생을 억제하고, 내마모성 박막에 존재하는 압축응력은 표면의 마모손상을 억제할 수도 있지만 인장 잔류응력은 소재의 피로강도 및 파손특성에 심각한 영향을 끼친다.⁽¹⁾ 특히, 최근 사용이 급증한 박막 재료에서 잔류응력은 아래와 같은 다양한 종류의 손상을 유발한다.^(2,3) 즉, 박막에 균열을 유발하거나, 압축 잔류응력이 심할 경우에는 박막과 기판 사이의 계면 파괴를 유도하기도 한다. 또, 잔류응력에 의한 기판의 소성적인 굽힘 현상으로 인해 제품의 생산과 사용 중 신뢰성에 악영향을 미치는 경우도 존재한다.

잔류응력은 발생원인에 따라서 크게 열응력(thermal stress)와 고유응력(intrinsic stress)으로 나눌 수 있다.⁽⁴⁾ 열응력은 박막과 기판 사이의 열팽창계수의 차이에 의해 생성되는 것으로서, 제조 후 냉각 시 또는 사용 중 온도변화에 의해 발생한다. 증착 중에 발생하는 고유응력은 박막과 기판의 격자정수(lattice parameter) 차이에 의해 발생하는 에피택셜 응력(epitaxial stress)과 박막 내부의 결정립계(grain boundary), 공공(vacancy), 전위(dislocation), 불순물(inclusion) 및 이상입자(secondary particle)와 같은 미세조직 변화와 관련된 응력으로 나눌 수 있다. 기판을 제거하면 열응력 및 에피택셜 응력과 함께 기판에 의해 구속된 박막 내부의 결합들도 일부 소멸하며, 내부 결합에 의해 발생한 응력도 크게 완화되어 무응력 상태에 접근한다. 이들 잔류응력의 측정 방법으로는 X-선 회절, hole drilling, 곡률 측정법, Moiré 간섭법 및 Raman 방법 등이 있다.⁽⁵⁻⁹⁾ 그러나, X-선 회절법 및 hole drilling⁽⁵⁻⁷⁾은 벌크 재료에 사용되었던 방법으로 시편 준비 및 시험과정이 까다로운 뿐만 아니라 박막에 적용하는 데 한계점이 있다. 또, Moiré 간섭법⁽⁸⁾은 미소영역의 변형양상에 대한 정확한 정보를 제공하는 장점이 있으나 미세한 격자형성(grating)의 어려움이 있고, Raman 방법⁽⁹⁾은 시험이 간단하지만 해석 방법이 정성적이며, 박막의 잔류응력 측정에 보편적으로 사용되어 온 곡률측정법⁽⁷⁾은 비접촉식으로 열사이클과 같은 시험에 적용할 수 있는 장점이 있으나, 수십 mm 에 걸친 표면조도를 측정하여 잔류응력에 의해 발생하는 평균곡률을 측정하기 때문에 박막의 국소한 잔류응력 분포를 확인할 수 없다는 문제점이 있다. 이처럼 박막 재료의 잔류응력 측정을 위해 여러 가지 시험기법과 이론적인 모델링 연구가 진행되고 있으나, 아직까지 경험적이며 여러 평가 기법에서 측정된 응력 평가치의 상호 호환성이 떨어진다.

이에 따라 박막 잔류응력의 평가를 위한 비파괴적이며, 정량적인 시험기법이 필요하게 되었다.

본 연구에서는 기존의 박막재료의 기계적 물성 평가에 주로 사용되었던 나노 압입시험 기법^(10,11)을 박막의 잔류응력 평가에 적용하였다. 나노 압입시험법은 기존의 압입 경도법과 달리 μN 수준의 압입하중을 인가하여 수백 nm 이하의 압흔을 형성하기 때문에 박막의 기계적 물성이나 복잡한 미세조직을 갖는 소재의 상(phase) 별 물성 분석에도 용이하다. 또한, 잔류응력 평가 기법이 확립되면, 균일한 응력상태로 가정되는 박막 표면의 미소한 2 차원적인 잔류응력 분포도 확인할 수 있을 것으로 기대된다. 나노 압입시험에서는 시험 중 압입하중과 nm 수준의 압입자 침투변위를 연속적으로 측정하여 압입하중-변위곡선(indentation load-displacement curve)을 형성한다. 이 압입하중-변위곡선은 시편에 압입하중을 인가하는 단계의 하중인가곡선(loading curve)과 최대하중 이후 시편에서 압입자가 후퇴하는 단계의 하중제거곡선(unloading curve)으로 구성된다. 특히, 탄성회복 과정인 하중제거곡선의 분석을 통해 구해진 최대하중에서의 기울기와 압입자와 시편의 접촉면적을 바탕으로 박막소재의 경도 및 탄성계수 평가가 이루어져 왔다.^(10,11) 압입시험을 통해 소재의 잔류응력을 평가하는 초기 연구는 주로 겉보기 경도값(apparent hardness)과 잔류응력의 실험적인 관계식을 유도⁽¹²⁾하거나, 잔류응력에 따른 압흔형상의 변화를 광학간섭계를 이용하여 관찰⁽¹³⁾하는 수준이었다. 또, 나노 압입시험과 같이 하중과 변위의 연속적인 측정이 가능해지면서, 곡선 분석을 통해 얻어진 겉보기 경도값과 잔류응력의 실험적인 관계를 조사⁽¹⁴⁾하기도 하였다.

그러나, 잔류응력이 존재하는 시편의 복잡한 압입 변형거동을 무응력 상태에서 유도된 하중-변위곡선 해석법을 이용하여 분석하는 것에 대한 문제점이 제기되었고, 압입하중을 주사전자현미경(scanning electron microscope)으로 정밀 측정⁽¹⁵⁾하거나 잔류응력 하에서 접촉형상에 대한 유한요소해석⁽¹⁶⁾을 통하여 얻어진 실제 접촉면적으로 나눈 고유경도(intrinsic hardness)는 잔류응력과 서로 무관한 것으로 확인하였다. 따라서, 잔류응력의 영향을 단순히 경도값이 아니라 응력제거에 따른 압입하중-변위곡선의 형태 변화에서 해석하고자 하는 연구⁽¹⁷⁾가 진행되었다. 그러나, 아직까지 압입시험을 통한 잔류응력의 정량화 연구는 미진한 형편이며, 본 연구에서는 압입하중을 일정하게 제어하면서 박막의 잔류응력을 제거할 때 발생하는 압입하중-변위곡선의 완화현상을 이론적으로 모델

링함으로써 경질 다이아몬드성 카본(diamond-like carbon) 박막의 잔류응력을 평가하고자 하였다.

2. 압입하중-변위곡선 분석을 통한 박막 잔류응력의 이론적 평가

2.1 압입 변형거동에 대한 잔류응력의 영향

박막에는 표면부에 평행하게 면내 등방향 잔류응력(in-plane isotropic residual stress)이 존재하는 것으로 가정할 수 있다. 잔류응력의 영향으로 인해 나노 압입시험에서 얻어지는 압입하중-인가곡선은 Fig. 1 과 같은 형태 변화를 나타낸다. 즉, 동일 압입하중에 대해 인장 잔류응력에서는 무응력 상태의 최대 압입깊이 h_i 에 비해 증가한 최대 압입깊이 h_i^T 가 발생하고, 이와 반대로 압축 잔류응력에 의해서는 최대 압입깊이가 h_i^C 로 감소하게 된다.⁽¹⁴⁻¹⁷⁾ 잔류응력에 의해 민감하게 변화하는 압입하중-변위곡선과 달리, 본 연구에서는 앞에서 언급된 것과 같이 고유경도는 잔류응력에 무관한 것으로 가정하였다. 따라서, 압입하중이 결정되면 잔류응력에 의해서 최대 압입깊이가 변화하더라도 고유경도는 일정하기 때문에 압입자와 시편간의 접촉깊이는 일정하고, 이러한 상황은 Fig. 2 와 같이 접촉형상을 모델링함으로써 설명할 수 있다.

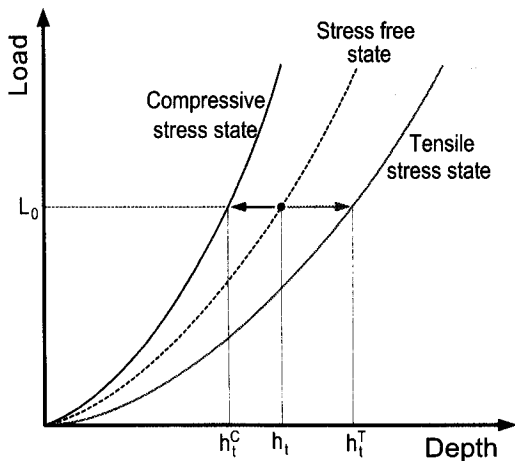


Fig. 1 Change of maximum indentation depth for a same applied load by the effect of residual stress states

Fig. 2 를 살펴보면 (a)의 압축 잔류응력에서 (b)의 무응력 상태를 거쳐 (c)의 인장 잔류응력으로 변함에 따라 동일한 압입하중에 대해 최대 압입깊이는 h_i^C 에서 h_i 를 거쳐서 h_i^T 로 증가한다. 또, 잔류응력에 무관하게 압입자와 시편의 접촉깊이는 동일해야 하므로, 압축응력 상태에서는 접촉 영역 주위에 탄성적인 pile-up 양상이 발생하게 되며, 인장 응력에서는 탄성적인 sink-in 양상에 의해 접촉면적이 일정해진다. 그러므로, 인장 혹은 압축응력 상태에서 무응력 상태로 응력이 제거되면, 탄성적인 pile-up 및 sink-in 깊이인 h_p 및 h_n 이 제거되고, 이에 따라 최대 압입깊이는 증가 혹은 감소하여 무응력 상태의 최대 압입깊이인 h_i 에 도달하게 된다.

압입하중을 일정하게 유지하면서 잔류응력을 제거하면 고유경도가 일정하다는 본 연구의 전제 조건에 따라서 실제 접촉면적의 변화는 없다. 이러한 하중제어 응력완화에 따른 압입거동은 압입깊이의 변화에 의해서 접촉면적이 변화하는 실제 뒤틀린 압입자와 달리 압입자와 시편이 실제 접촉

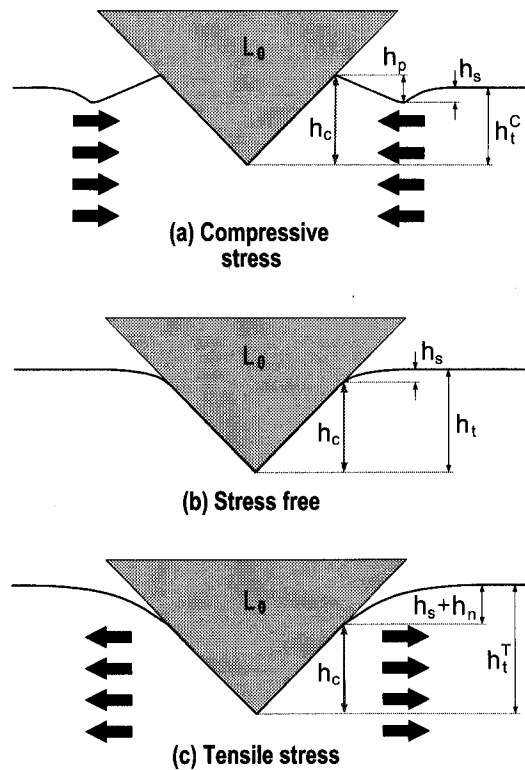


Fig. 2 Theoretically modeled surface morphologies around the contacts for (a) compressive stress, (b) stress free and (c) tensile stress states

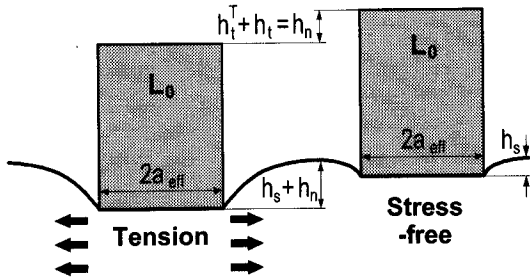


Fig. 3 Release of elastic sink-in depth by stress-relief based on the elastic flat punch theory

상태에 있을 때는 항상 일정 접촉면적을 갖게 되는 밀면이 원형인 평면 펀치(flat punch) 접촉양상으로 Fig. 3 과 같이 모델링 할 수 있다. 동일한 압입하중 L_0 와 접촉직경 $2a_{eff}$ 를 유지하면서 인장 상태에서 무응력 상태로 잔류응력이 완화되면 접촉영역 외부의 탄성적인 sink-in 깊이 h_n 만큼의 깊이가 완화가 발생하며, 이 크기는 최대 압입깊이의 완화분인 $h_t^T - h_t$ 와 동일하다. 박막의 면내 잔류응력과 압입인자의 상호작용을 확인하기 위해서는 변위항인 최대 압입깊이의 완화분에서 응력항으로 바꿀 수 있는 하중 항으로 유도하는 과정이 필요하다.

평면펀치 이론⁽¹⁰⁾에 따르면, Fig. 3 에 나타난 무응력 상태에서 접촉영역 외부의 탄성굽힘 깊이고 압입하중의 관계는 식 (1)로 표현할 수 있다.

$$h_s = \frac{(1-\nu^2)}{2E_r a_{eff}} L_0 \quad (1)$$

잔류응력에 의한 압입거동의 변화도 압입자와 시편 간의 접촉영역 외부의 탄성적인 pile-up 및 sink-in 깊이로 발생하므로, 식 (1)을 이용하여 표현할 수 있다. Fig. 3 에 나타난 인장 잔류응력에서 접촉영역 외부에 발생하는 탄성적인 변형깊이는 $h_s + h_n$ 으로 나타나며, 무응력 상태의 식 (1)과 비교해 보면, 잔류응력의 영향이 없다면 h_n 만큼의 추가 굽힘변형을 동반하기 위한 추가 압입하중 L_{res} 가 필요하다. 따라서, 인장 잔류응력 하의 압입상태 ($L_0, h_s + h_n$)과 등가인 무응력 하의 압입상태는 ($L_0 + L_{res}, h_s + h_n$)으로 나타내어진다. Fig. 3 의 인장 잔류응력 상태에서 압입하중을 일정하게 유지하면서 응력을 제거하면 완화깊이는 h_n 으로 나타나며, 이 값은 최대 압입깊이의 완화분인 $h_t^T - h_t$ 와 동일하다. 잔류응력 제거에 의해서 발

생하는 완화깊이와 관련된 압입하중의 감소분은 잔류응력 유도 수직하중(residual stress-induced normal load; L_{res})의 개념으로 식 (2)로 나타낼 수 있다.

$$L_{res} = \frac{2E_r a_{eff}}{1-\nu^2} h_n = \frac{2E_r a_{eff}}{1-\nu^2} (h_t^T - h_t) \quad (2)$$

잔류응력의 정량화를 위해서는 L_{res} 와 잔류응력의 상호작용에 대한 이해가 필요하며, 등가응력 상태(equivalent stress state)의 모델링을 통하여 설명할 수 있다.

2.2 응력 유도 수직하중의 모델링을 통한 잔류응력의 정량적 평가

박막 두께의 1/10 이하의 얇은 압입깊이에 있어서 압입자가 느끼는 잔류응력 상태는 박막 두께 방향으로도 균일한 것으로 가정할 수 있다. 앞서 언급된 내용과 같이 잔류응력의 영향으로 인해 압입하중에는 추가적인 잔류응력 유도 수직하중이 부가되거나 제거되기도 한다. 그러므로, 정량적인 잔류응력의 평가를 위해서는 잔류응력 유도 수직하중의 의미와 정확한 분석이 필요하다. 잔류응력 유도 수직하중의 크기와 방향은 등방향 박막 잔류응력을 등가적인 응력상태(equivalent stress state)로 표시한 기존의 연구⁽¹⁷⁾에서 확인할 수 있다. 우선 3 축 정수압 응력(hydrostatic stress)은 재료의 소성 변형과 무관하므로, 소성 변형강도를 나타내는 고유경도와도 무관하다. 그러므로, 박막에 작용하는 2 축 등방향 잔류응력은 3 축 정수압 응력에서 1 축 응력을 제거한 상태와 등가로 설명할 수 있다. 즉, 박막 단면에 대한 모식도인 Fig. 4 와 같이 면내의 2 축 인장 잔류응력($\sigma_{res}^x = \sigma_{res}^y$)은 3 축 인장 응력에 z 축으로 동일한 크기의 1 축 압축응력을 인가하면 식 (3)과 같이 형성된다.

$$\begin{aligned} \sigma_{res}^x &= \sigma_{res}^y = \sigma_{res} \\ \sigma_z &= -\sigma_{res} \end{aligned} \quad (3)$$

식 (3)에서 σ_z 로 나타낸 잔류응력의 압입하중에 대한 영향은 표면에 수직방향으로 σ_{res}^x 와 동일한 크기와 반대부호를 가지는 응력항과 접촉면적의 곱인 잔류응력 유도 수직하중 L_{res} 로 고려할 수 있다. 그러므로, 식 (2)와 (3)을 결합하면 하중을 일정하게 유지할 때 응력완화에 따른 최대 압입깊이의 완화분에서 잔류응력을 평가하는 식 (4)를

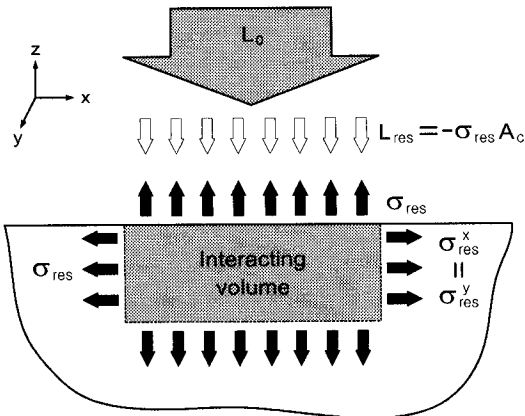


Fig. 4 Interaction of residual stress-induced normal load (L_{res}) and indentation load (L_0)

유도할 수 있다.

$$\sigma_{res} = \frac{L_{res}}{A_c} = \frac{2E_r a_{eff}}{(1-\nu^2)A_c} (h_i^T - h_i) \quad (4)$$

3. 실험 방법

압입하중-변위곡선의 형태변화를 응력완화 모델링을 통해 분석하여 경질 다이아몬드성 카본 박막의 잔류응력을 평가하였다. 벤젠(C_6H_6)을 합성가스로 이용한 radio frequency plasma assisted chemical vapor deposition(r.f.-PACVD) 방법을 통하여 실리콘 기판 위에 0.5 와 0.6 μm 두께로 다이아몬드성 카본 박막을 증착하였다. 증착 중 반응기 내 압력은 10 mtorr 였고, 기판의 바이어스 음전압은 400 V 를 인가하였다. 증착된 박막 시편은 나노 압입시험을 위하여 5 mm × 5 mm 크기로 절단하여 준비하였다. 기판에 증착된 잔류응력을 가진 박막과 비교하기 위한 무응력 상태의 자유막 시편은 습식에칭으로 기판을 제거하여 형성하였다. 서론에서 언급된 바와 같이 자유막을 형성하여 기판의 구속을 제거하면 열응력 및 에피택셜 응력은 물론, 박막 내부 결함에 의해 야기된 고유응력도 일부 제거되어 무응력 상태에 도달하게 된다. 실리콘 기판은 실온에서 $HNO_3 : HF : CH_3COOH$ 를 6 : 3 : 1 로 혼합한 용액을 이용하여 제거하였다. 기판이 제거된 자유막은 에탄올을 이용하여 세척한 뒤, 실리콘 웨이퍼 위에 접착제 없이 올려놓고 나노 압입시험을 행하였다. 잔류응력을 가진 증착 상태의 박막과 자유막에 대하여 동일한 조건으로 나노 압입시험을 행하였다. 기판 영향을 제외한 박막만의

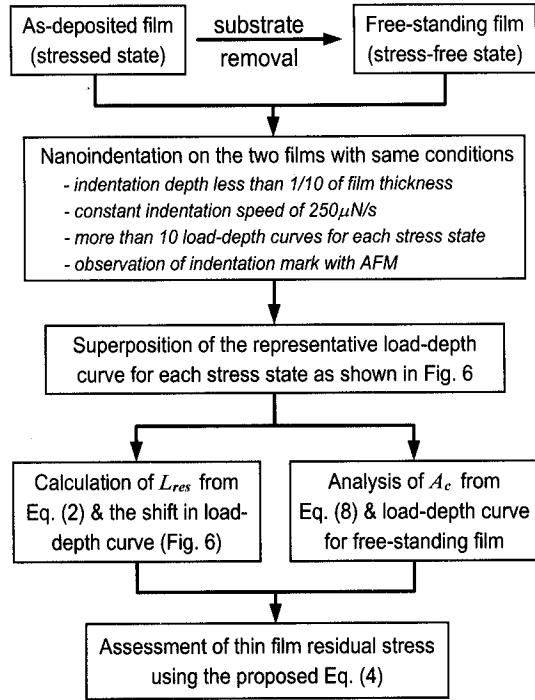


Fig. 5 Flowchart of experimental steps and stress analysis procedure

물성을 평가하기 위한 압입 시험조건은 증착 상태의 박막에 대한 예비 압입시험을 통하여 결정하였다. 박막 두께의 1/10 이하의 압입깊이⁽¹⁸⁾를 갖도록 0.5 μm 두께에서는 1000 μN 으로, 0.6 μm 두께의 박막에 대해서는 2000 μN 으로 압입하중을 결정하였다. 각각의 증착된 박막과 자유막에 삼각뿔 압입자를 이용하여 250 $\mu N/s$ 의 일정한 속도로 압입시험을 행하여 압입하중-변위곡선을 형성하였다. 박막의 여러 영역에 걸쳐 10 회의 압입시험에서 얻어진 압입하중-변위곡선들을 중첩시켰을 때, 가장 중심부에 위치하여 각 응력상태를 대표하는 압입하중-변위곡선을 선택하여 잔류응력을 분석하였고, 압입시험 후 발생하는 압흔 형상은 원자단위 현미경(atomic force microscope)으로 관찰하였다. 또, 나노 압입시험으로 얻어진 평균적인 잔류응력과 비교하기 위하여 기존의 레이저 곡률법을 통해 각 박막의 잔류응력을 별도로 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

잔류응력 상태의 박막과 무응력 상태의 자유막에 대해 동일한 조건으로 나노 압입시험을 행하여

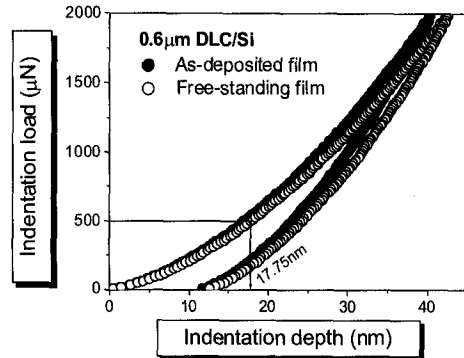
Table 1 Variation of indentation depths at maximum indentation loads for two kinds of DLC films

	0.5 μm DLC film (at 1000 μN)	0.6 μm DLC film (at 2000 μN)
As-deposited film	37.74 \pm 0.76 nm	40.30 \pm 0.61 nm
Free-standing film	43.68 \pm 0.68 nm	42.45 \pm 1.08 nm

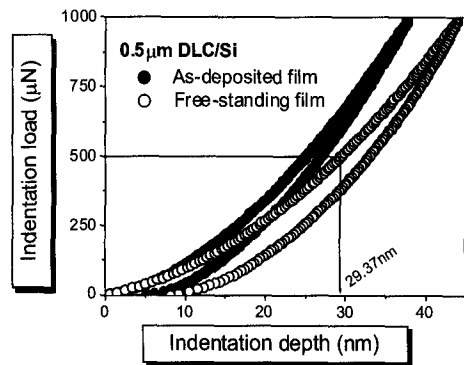
Table 1 과 같은 결과를 얻었다. 각 박막에 최대 압입하중이 인가되었을 때 나타나는 압입깊이의 변화를 조사해 보면, 0.5 μm 두께의 박막에서는 ± 0.76 nm 이내의 재현성을 가졌다. 0.6 μm 두께를 갖는 박막에 2000 μN 의 최대하중을 인가했을 때 나타나는 압입깊이는 기판 위에 증착된 박막에서 ± 0.61 nm를 갖는 반면에, 자유막은 ± 1.08 nm로 좀 더 큰 변화를 나타냄을 확인할 수 있었다.

박막 두께 및 기판 유무에 따라 각 경우에 대해 얻어지는 10 개의 압입하중-변위곡선을 중첩하였고, 중첩된 곡선 중 가장 중심부에서 얻어지는 곡선을 Fig. 6 으로 나타내고, 박막의 강도 특성과 잔류응력을 분석하였다. 우선 잔류응력의 영향을 배제한 박막 두께에 따른 기계적 물성의 차이를 확인하기 위하여 자유막의 압입하중 인가곡선에서 500 μN 의 동일한 압입하중에 대응하는 압입깊이의 변화를 측정하였다. 비교 결과, 0.5 μm 두께의 박막에서 얻어진 29.37 nm에 비해 0.6 μm 두께의 박막에서는 17.75 nm로 훨씬 적은 압입깊이를 가지는 것으로 나타났다. 또한, 0.5 μm 과 0.6 μm 두께의 자유막에 대한 겉보기 경도를 계산한 결과, 각각 3.5 GPa 과 21.1 GPa로 나타났으며, 이로부터 0.5 μm 두께의 다이아몬드성 카본 박막의 막질이 훨씬 무른 상태임을 확인할 수 있었다.

무응력 상태인 자유막의 압입하중-변위곡선과 비교해 볼 때, 잔류응력 상태의 압입하중-변위곡선은 전반적으로 왼쪽으로 치우쳐 있는 것으로 나타났다. 즉, 동일한 압입하중을 인가하더라도 증착된 박막은 압입자 침투에 대한 저항성이 큰 압축응력 상태임을 나타낸다. 잔류응력의 영향에 의한 겉보기경도와 고유경도의 변화를 조사하기 위하여 0.6 μm 두께의 다이아몬드성 카본 박막에서 얻어진 압입하중-변위곡선과 최대하중에서 형성된 압흔 형상을 원자단위현미경으로 관찰하였다. 기존의 하중제거곡선 분석을 이용하여 분석된 겉보기경도는 압축 잔류응력 상태에서 23.4 GPa로 무응력 상태의 21.1 GPa에 비해 10.9% 이상 과대 평가되었다. 반면, 원자단위현미경을 통해 관찰된 접촉깊이는 잔류응력 상태에서 249.0 \pm 8 nm, 무응력



(a) Indentation curves for 0.6 μm DLC film



(b) Indentation curves for 0.5 μm DLC film

Fig. 6 Shape change in indentation load-depth curves for two DLC films by the effect of residual stress

상태에서 246.3 \pm 6 nm로 1.1% 이내의 미소한 오차를 나타내어, 본 연구의 고유경도 불변에 대한 가정의 타당성을 증명할 수 있었다.

잔류응력에 따른 압입하중-변위곡선의 변화양상을 이론적으로 분석하기 위하여, 기준이 되는 무응력 자유막의 압입하중-변위곡선에 대한 분석을 행하였다. 하중제거 회복곡선에서 탄성성질을 분석하기 위하여 기존의 평면 편치이론⁽¹⁰⁾을 수정하여 적용하였다. 즉, 하중 제거곡선을 만족시키는 멱급수 형태의 적합화 곡선(power law typed fitting curve; $L = k(h - h_f)^m$)을 얻고, 최대 하중에서 접선을 형성하여 기울기에서 stiffness S 를 구하고, 변위축 절편에서 접촉깊이 h_c 를 계산하였다. 하중제거 곡선의 분석은 Fig. 7에 나타내었고, 이로부터 얻어진 stiffness S 와 접촉깊이의 관계는 식 (5)로 표현된다.

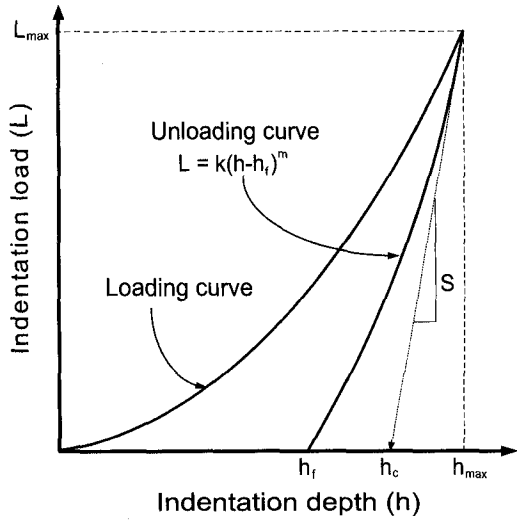


Fig. 7 Analysis of elastic unloading part in indentation load-depth curve

$$S = \frac{L_{max}}{h_{max} - h_c} \quad (5)$$

압입시험시 압입자와 박막의 복합 탄성성질인 환산탄성계수(reduced modulus; E_r)는 식 (6)으로 표현된다.

$$E_r = \frac{\sqrt{\pi}S}{2\sqrt{A_c}} \quad (6)$$

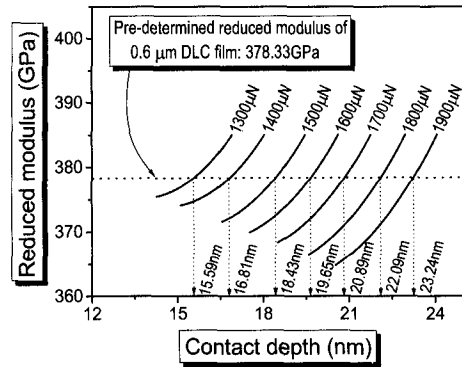
일정한 첨단각을 갖는 압입자에 대해 접촉면적은 기하학적 형상을 통해 접촉깊이 h_c 와의 관계를 표현할 수 있으나, 압입깊이가 수십 nm 이하로 얇으면 압입자 첨단 형상은 불규칙하다고 볼 수 있다. 따라서, 얇은 압입에서 접촉깊이와 접촉면적의 관계는 fused quartz 와 같이 압입깊이에 무관하게 탄성계수가 일정한 표준물질의 압입시험을 통해 식 (7)과 같은 실험식으로 결정된다.

$$A_c = C_0 h_c^2 + C_1 h_c + C_2 h_c^{1/2} + C_3 h_c^{1/4} + C_4 h_c^{1/8} + C_5 h_c^{1/16} \quad (7)$$

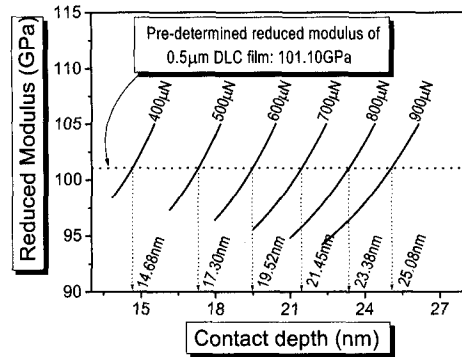
윗 식에서 C_0 는 삼각뿔 압입자의 기하학적 형상에 근거하여 24.5 로 고정되고, C_1 에서 C_5 까지의 상수는 실험적인 다항 적합화(polynomial fitting) 과정을 통해 구해진다. 식 (6)과 (7)을 이용하여 최대 압입하중에서 계산된 다이아몬드성 카본

Table 2 Reduced modulus and intrinsic film modulus for two DLC films

	0.5 μm DLC film	0.6 μm DLC film
Reduced modulus (GPa)	101.10	378.33
Film elastic modulus (GPa)	106.44	542.05



(a) Contact depths for 0.6 μm DLC film



(b) Contact depths for 0.5 μm DLC film

Fig. 8 Determination of contact depths for lower loads using the reduced modulus from maximum indentation load and Eq.(8)

박막의 환산탄성계수와 박막만의 탄성계수는 Table 2 에 나타내었다. 박막만의 탄성계수를 계산하기 위해서 다이아몬드 압입자의 탄성계수와 Poisson 비는 문헌치인 1141 GPa 과 0.07 을 사용⁽¹⁵⁾ 하였고, 다이아몬드성 카본 박막의 Poisson 비는 문헌에 보고된 0.2 를 사용⁽¹⁹⁾ 하였다. 압입하중-변위곡선의 형상에서 확인된 두께에 따른 경도변화와 동일하게 Table 2 에서도 0.6 μm 두께의 다이아몬드성 카본 박막은 0.5 μm 두께의 박막에 비해

Table 3 Contact properties and relaxed maximum depth at each indentation load for 0.6 μm DLC film

Indentation Load (μN)	Contact depth (nm)	Contact radius (nm)	Relaxation depth (nm)
1900	23.24	139.41	2.087
1800	22.09	133.60	1.986
1700	20.89	127.18	1.962
1600	19.65	121.27	1.885
1500	18.43	115.07	1.816
1400	16.81	106.94	1.674
1300	15.59	100.73	1.643

Table 4 Contact properties and relaxed maximum depth at each indentation load for 0.5 μm DLC film

Indentation load (μN)	Contact depth (nm)	Contact radius (nm)	Relaxation depth (nm)
900	25.08	269.53	6.061
800	23.38	256.15	5.717
700	21.45	240.45	5.239
600	19.52	224.07	4.900
500	17.30	204.38	4.420
400	14.68	188.75	3.799

탄성적인 거동을 나타내었다.

접촉깊이에 따른 잔류응력의 변화를 분석하기 위하여 여러 압입하중에 대응하는 압입자와 자유막 표면의 접촉깊이 평가가 필요하며, 본 연구에서는 식 (5)와 (6)을 결합한 식 (8)을 이용하여 계산하였다.

$$E_r = \frac{\sqrt{\pi}L_{max}}{2(h_{max} - h_c)\sqrt{A_c}} \quad (8)$$

즉, 분석하려는 압입하중에서 압입깊이에 따른 환산탄성계수의 변화를 Fig. 8 과 같이 나타내었고, 이미 평가된 최대 압입하중의 환산탄성계수 값과 일치하는 점에서 각 압입하중에 해당하는 접촉깊이를 계산하였다. 계산된 접촉깊이를 식 (7)에 대입하여 실제 접촉면적을 구하고, 식 (9)로부터 유효 접촉반경 a_{eff} 를 구하여 밀면이 원형인 평면 편치 이론⁽¹⁰⁾에 적용하였다.

$$A_c = \pi a_{eff}^2 \quad (9)$$

기관에 증착된 박막과 자유막의 하중인가곡선을 비교하여 일정 압입하중 하에서 응력을 제거시킬 때 발생하는 압입깊이의 완화정도를 Tables 3 과

Table 5 Evaluated residual stress at each indentation load for 0.6μm DLC film

Indentation Load (μN)	Residual stress-induced normal load (μN)	Residual stress (GPa)
1900	231.51	-3.596
1800	220.14	-3.605
1700	200.79	-3.581
1600	188.83	-3.716
1500	172.94	-3.743
1400	158.14	-3.802
1300	135.45	-3.770

Table 6 Evaluated residual stress at each indentation load for 0.5 μm DLC film

Indentation Load (μN)	Residual stress-induced normal load (μN)	Residual stress (GPa)
900	383.58	-1.627
800	344.23	-1.615
700	296.61	-1.576
600	258.45	-1.582
500	213.72	-1.564
400	162.94	-1.528

4 에 정리하였다. 식 (2)를 이용하여 일정 압입하중 제어시의 완화깊이로부터 잔류응력 유도 수직하중을 계산하였다. 또, 식 (4)를 이용하여 응력 유도 수직하중에서 잔류응력을 평가하였으며, 이를 Tables 5 와 6 에 나타내었다. 나노 압입시험을 통해 평가된 평균 잔류응력치는 0.5 μm과 0.6 μm 두께의 다이아몬드성 카본 박막에 대해 각각 -1.582 ± 0.032 GPa 과 -3.735 ± 0.110 GPa 로 분석되었다. 그리고, 실험 결과의 상호비교를 위해 적용되었던 레이저 곡률법에서 얻어진 평균 잔류응력치는 0.5 μm과 0.6 μm 두께의 박막에 대해 -1.98 ± 0.07 GPa 과 -3.8 ± 0.5 GPa 로 측정되었다. 두가지 방법을 통해 평가된 잔류응력은 Fig. 9 를 통하여 상호 비교되었다. 높은 탄성계수를 나타내는 치밀한 막질의 0.6 μm 다이아몬드성 카본 박막에서 나노 압입시험 방법을 통해 분석된 잔류응력은 기존의 곡률법을 통해 측정된 응력값과 잘 일치함을 확인할 수 있었다. 그러나, 접촉깊이가 큰 영역에서 분석된 잔류응력값은 곡률법의 평균치보다 약간 낮게 평가됨을 확인할 수 있었다. 이것은 압입하중이 증가함에 따라, 본 모델링의 전제가정과 달리 비탄성적인 변형이 접촉면적 외부로 확장하는 데서 이유를 찾을 수 있다. 즉, 비탄성적인 변형영역이 확장하면, 잔류응력 제거시 탄성적인 압입깊이의 완화영역은 압입자로부터 멀어지게 되고

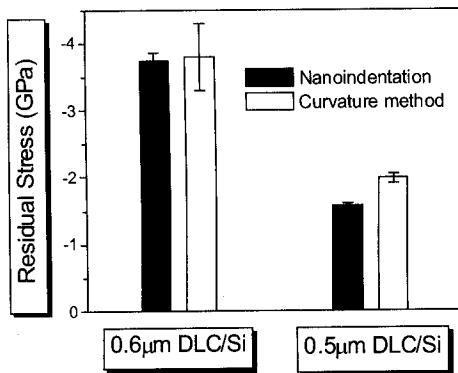


Fig. 9 Comparisons of the analyzed residual stress values for 0.6 and 0.5 μm DLC films with the results from curvature method

압입자의 잔류응력에 대한 민감도도 떨어지게 된다.

동일한 관점에서 Fig. 9의 0.5 μm DLC 박막의 나노 압입시험을 통해 평가된 잔류응력값과 곡률법의 잔류응력값 간의 상호관계를 확인할 수 있다. 앞서 설명되었던 압입하중-변위곡선의 형상과 탄성계수에 대한 실험결과에서 확인한 것처럼 0.5 μm 두께의 다이아몬드성 카본 박막은 막질이 연질이며, 비탄성적인 변형이 0.6 μm 두께의 박막에 비해 강하게 나타났다. 그러므로, 잔류응력은 실제 응력치 보다 낮게 평가된다고 설명할 수 있다.

5. 결론

박막 내 잔류응력의 제거에 따른 나노 압입시험시 형성되는 압입하중-변위곡선의 형상변화를 이론적인 응력완화과정으로 모델링함으로써 경질 다이아몬드성 카본 박막의 잔류응력을 분석하였다. 각 응력 상태를 대표하는 압입하중-변위곡선의 분석을 통해 계산된 잔류응력은 박막재료의 응력평가에 보편적으로 사용되어 왔고 본 연구에서는 참고 시험 기법으로 사용된 곡률법에서 측정된 결과와 호환적이었으며, 나노 압입시험을 통한 잔류응력 평가 모델링의 타당성을 확인할 수 있었다. 본 연구에서 얻어진 구체적인 결과를 정리하면 다음과 같다.

(1) 잔류응력에 따른 압입하중 인가곡선의 기울기 변화를 구체적으로 확인할 수 있었으나, 원자단위 현미경을 통한 압흔의 정확한 관찰 결과, 실제 접촉면적의 변화는 1.1% 이내로 미미하였다. 잔류응력에 무관한 접촉깊이(면적) 및 고유경도와

잔류응력에 민감한 압입하중 인가곡선의 형상을 만족시키기 위하여, 접촉영역 외부의 탄성적인 sink-in과 pile-up 양상으로 접촉형상을 모델링하였다.

(2) 압입하중을 일정하게 제어하면서 박막 잔류응력을 제거할 때 나타나는 최대 압입깊이 완화분을 평면 편치이론에 적용하고, 잔류응력과 압입응력의 상관관계를 모델링하여 나노 압입시험을 통한 잔류응력 평가식을 아래와 같이 제시하였다.

$$\sigma_{res} = \frac{L_{res}}{A_c} = \frac{2E_r a_{eff}}{(1-\nu^2)A_c} (h_i^T - h_i)$$

(3) 하중제어 응력완화 모델링에서 평가된 잔류응력은 0.5 μm과 0.6 μm 다이아몬드성 카본 박막에 대해 각각 -1.582 ± 0.032 GPa과 -3.735 ± 0.110 GPa로 평가되었고, 레이저 곡률법에서 얻어진 잔류응력치인 -1.98 ± 0.07 GPa과 -3.8 ± 0.5 GPa과 유사한 값을 나타내었다.

(4) 0.6 μm 두께의 박막에서 나노 압입시험으로 분석된 잔류응력치는 참고 시험기법으로 이용한 곡률법에서 얻어진 결과와 일치하였다. 반면, 0.5 μm 두께의 박막에서는 나노 압입시험 결과 얻어진 잔류응력이 곡률법에 비해 낮게 평가됨을 확인할 수 있었다. 이것은 자유막의 결보기 정도 비교에서 확인한 것과 같이 0.6 μm 박막에 비해 매우 무른 상태이며, 이에 따라 접촉영역 하부로 소성역이 크게 발달하여 압입자의 잔류응력에 대한 민감도를 감소시키는 이유로 설명할 수 있다.

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 TiCxN1-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) Joo, J. W. and Park, C. K., 1998, "Determination of Non-uniform Residual Stress by the Hole Drilling

- Method," *Trans KSME A*, Vol. 22, pp. 268~277.
- (7) 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.
- (8) Lee, O. S. and Read, D. T., 1995, "Micro-strain Distribution around a Crack Tip by Electron Meam Moiré Method," *KSME International Journal*, Vol. 9, pp. 298~311.
- (9) 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.
- (10) 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.
- (11) Pharr, G. M. and Oliver, W. C., 1992, "Measurement of Thin Film Mechanical Properties Using Nanoindentation," *MRS bulletin*, July, pp. 28~33.
- (12) Sines, G. and Carlson, R., 1952, "Hardness Measurements for Determination of Residual Stresses," *ASTM Bulletin*, February, pp. 35~37.
- (13) Underwood, J. H., 1973, "Residual-stress Measurement Using Surface Displacements around an Indentation," *Experimental Mechanics*, Vol. 13, pp. 373~380.
- (14) 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.
- (15) 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.
- (16) 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.
- (17) 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.
- (18) Tsui, T. Y. and Pharr, G. M., 1999, "Substrate Effects on Nanoindentation Mechanical Property Measurement of Soft Films on Hard Substrates," *J. Mater. Res.*, Vol. 14, pp. 292~301.
- (19) Thomsen, N. B., Fischer-Cripps, A. C. and Swain, M. V., 1998, "Crack Formation Mechanisms during Micro and Macro Indentation of Diamond-like Carbon Coatings on Elastic-plastic Substrates," *Thin Solid Films*, Vol. 332, pp. 180~184.