

DOI: 10.16078/j.tribology.2016.03.001

粗糙表面的黏着试验研究

陈荣誉, 黄平*

(华南理工大学机械与汽车工程学院, 广东 广州 510640)

摘要: 在微机械电子系统中, 表面粗糙峰的几何特征、尺寸以及形状等对表面黏着以及摩擦特性有重要作用. 为了研究粗糙度对黏着力影响, 首先用KOH溶液腐蚀硅片, 得到8个粗糙度不同的样品. 使用原子力显微镜(AFM)来测量样品的黏着力. 分别使用两种探针来模拟不同的接触几何, 第一种探针针尖为一个2 μm 左右的平台, 另一种探针为尖探针. 试验分别在干燥的手套箱内以及在空气中进行. 在样品表面随机选取15个测量点, 每个点测量50次, 然后根据计算值, 确定平面的平均黏着力以及标准差. 并与Robinovich模型的计算结果作比较. 结果显示: 当粗糙度较小时, 随着粗糙度增大, 黏着力下降很快, 这与Robinovich模型变化趋势较吻合; 当粗糙度较大时, 随着粗糙度增大黏着力略有增加, 但不是很明显, 与Robinovich模型相差较大.

关键词: 粗糙表面; 原子力显微镜; 黏着力; 试验

中图分类号: TH117.1

文献标志码: A

文章编号: 1004-0595(2016)03-0269-07

Experiment Study on Adhesion between Rough Surfaces

CHEN Rongyu, HUANG Ping*

(School of Mechanical and Automotive Engineering, South China University of Technology,
Guangdong Guangzhou 510640, China)

Abstract: The geometric properties of surface asperities have important effects on surface adhesion and friction in tribological systems. In order to study the effect of roughness on adhesion, etching of the silicon wafers using KOH solution was performed to get eight samples with different roughness. In this paper, the effect of RMS on adhesion was studied by using atomic force microscope (AFM). Two AFM probes were used to simulate different contact geometry. The one had a flat with a diameter $\sim 2 \mu\text{m}$ and the other one had a sharp tip. The experiments were performed under the ambient condition and in the glove box. Then 15 points were selected for measuring the adhesion force and 50 measurements were performed on each point, and the average adhesion force and standard deviation of the sample were determined according to the calculated values. Finally, comparison on the experiment value to the calculated results from Rabinovich model was made. The results show that in case of relative small RMS, the adhesion force decreased sharply with increasing RMS, and the trends fitted the Robinovich model well, as the RMS was large, the adhesion force unobviously increased with increasing RMS, and a larger difference was found to Rabinovich model.

Key words: rough surface; experiment; AFM; adhesion

随着微机械电子技术的发展, 越来越多的微纳电子元器件和设备被广泛的使用. 在宏观下, 物体主要受到的是惯性力的作用; 而在微纳米尺度下, 由于较大

的表面积与体积比, 更多的是受到表面效应. 因此, 在微纳元器件的设计中要考虑表面效应的影响, 提高元器件的强度以及减小表面力. 其中, 黏着力的存在是

Received 11 August 2015, revised 15 January 2016, accepted 24 February 2016, available online 28 May 2016.

*Corresponding author. E-mail: mephuang@scut.edu.cn, Tel:+86-20-87114588.

The project was supported by the National Natural Science Foundation of China (51175182).

国家自然科学基金项目(51175182)资助.

MEMS元器件在制造和使用过程中的主要失效形式^[1]. Zhao等^[2]在试验中通过SEM拍摄了微悬臂的黏着失效;文献[3]也报道了微机械加速度计梳齿结构的粘连.

微纳米尺度下黏着力跟表面粗糙度以及表面能有关,有很多学者进行粗糙度对黏着力影响的相关研究^[4-13],随着粗糙度的增大会减小接触面积,从而减小黏着力的大小,但是对于相对较大粗糙度表面的黏着力的研究相对较少.经典的黏着理论如JKR模型^[14]、DMT模型^[15]考虑了两个相对表面间的黏着力,但是没有考虑表面粗糙度对黏着力的影响.Rumpf^[16]考虑了一个半球型粗糙峰与曲面的单峰接触,提出了如下的模型:

$$F_{ad} = \frac{A_H}{6H_0^2} \left[\frac{rR}{r+R} + \frac{R}{(1+r/H_0)^2} \right] \quad (1)$$

这个模型由两部分组成,前部分可以看成是曲面与粗糙峰接触的黏着力,后一部分可以看成是曲面与样品非接触部分的黏着力.其中 A_H 为Hamaker常数, R 和 r 为曲面的曲率半径以及样品表面粗糙峰的曲率半径, H_0 为曲面与粗糙峰之间的分离距离.Robinovich等^[17]考虑了样品表面粗糙度对黏着力的影响,引入了均方根粗糙度修正了Rumpf模型,其模型如下:

$$F_{ad} = \frac{A_H R}{6H_0^2} \left[\frac{1}{1+R/(1.48r_{rms})} + \frac{1}{(1+1.48r_{rms}/H_0)^2} \right] \quad (2)$$

其中 r_{rms} 为样品表面的均方根粗糙度.

本文中先采用不同浓度的KOH溶液不同时间下腐蚀硅片,得到粗糙度不同的样品.然后使用尖探针以及平头探针分别在手套箱以及空气中测量黏着力,并与Robinovich模型相比较.

1 试验部分

1.1 样品的制备

在试验中为了研究粗糙度对黏着的影响,我们采用湿法腐蚀的方法对硅片进行腐蚀,得到不同粗糙度的硅片.试验中所用的硅片为100晶向,其厚度为 $650 \pm 10 \mu\text{m}$,电阻率为 $0.01 \sim 1 \Omega \cdot \text{cm}$.我们分别选用质量分数为10%和25%的KOH溶液和异丙醇的混合溶液腐蚀单晶硅.加入异丙醇是为了减缓反应的速率,得到的样品表面也会更为平整.其中10%与25%采用的是质量分数,即10 g的KOH与90 g的水以及25 g的KOH与75 g的水混合成溶液.KOH溶液与异丙醇的比例为9:1,反应温度为 $75 \text{ }^\circ\text{C}$.为了得到粗糙度不同的表面,反应的时间分别设置为5、10、20和30 min.其反应机理如下:

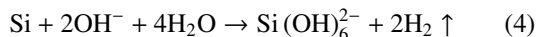
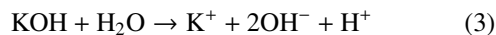


图1为硅片在10% KOH溶液中不同腐蚀时间的扫描电镜(ZEISS Merlin, Germany)图,放大倍数为20 000倍.A、B、C、D分别对应腐蚀时间为5、10、20和30 min.从图1中可以看出,在5 min的时候表面还有很大一块未腐蚀,而随着腐蚀时间的加长,表面出现颗粒状层叠的现象.并且随着反应时间变长,颗粒变得越来越.在腐蚀30 min时,比较大的颗粒的直径可以达到500 nm.

图2为硅片在25% KOH溶液中不同腐蚀时间的扫描电镜(ZEISS Merlin, Germany)图,放大倍数为2 000倍.A、B、C、D也分别与腐蚀时间5、10、20和30 min对应.腐蚀5 min时,表面开始出现散落分布的小颗粒,随着反应时间加长颗粒逐渐变大以及密集.可以清楚地看出,其颗粒形状为“金字塔状”.反应30 min时,其颗粒大小可以达到 $10 \mu\text{m}$.在图1中并没有观察到这种形状,因为反应的速率太快^[18-20],在“金字塔状”形成之前旁边的颗粒已经在形成,相互挤压,所以才会出现图1中颗粒间层叠交错的形貌.另外,KOH浓度越高,形成的颗粒也会越大.

我们使用原子力显微镜在每个样品表面扫描 $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ 的范围,形貌如图3所示.对应的a为抛光硅片,b、c、d、e分别为10% KOH腐蚀5、10、20以及30 min的硅片,f、g、h为25% KOH腐蚀5、10以及20 min的硅片.25% KOH腐蚀30 min的硅片表面过于粗糙已经超出了试验所用AFM测试的范围,因此这里并没有给出形貌.形貌是通过原子力显微镜的接触模式获得的,使用的探针为尖探针,针尖的曲率半径小于10 nm.试验前,所有样品先在酒精溶液中超声清洗10 min,然后在蒸馏水中超声清洗10 min.

1.2 试验装置及测量方法

在试验中,需要测量样品的形貌和黏着力.所采用仪器为本原原子力显微镜.黏着力是通过力曲线的测量获得的.图4为原子力显微镜获取的一条典型的力曲线, x 轴表示扫描器的 z 向电压(V), y 轴表示光强计检测到的电压 V ,实线表示进针过程,而虚线表示退针过程.在退针过程中,由于黏着力的作用,探针的针尖会吸附在测量样品的表面,直到相互作用的力梯度小于探针的法向弹性系数时,针尖才会跳离样品表面.图4中箭头所标的 U_2 段就表示黏着力的作用.

根据胡克定律:

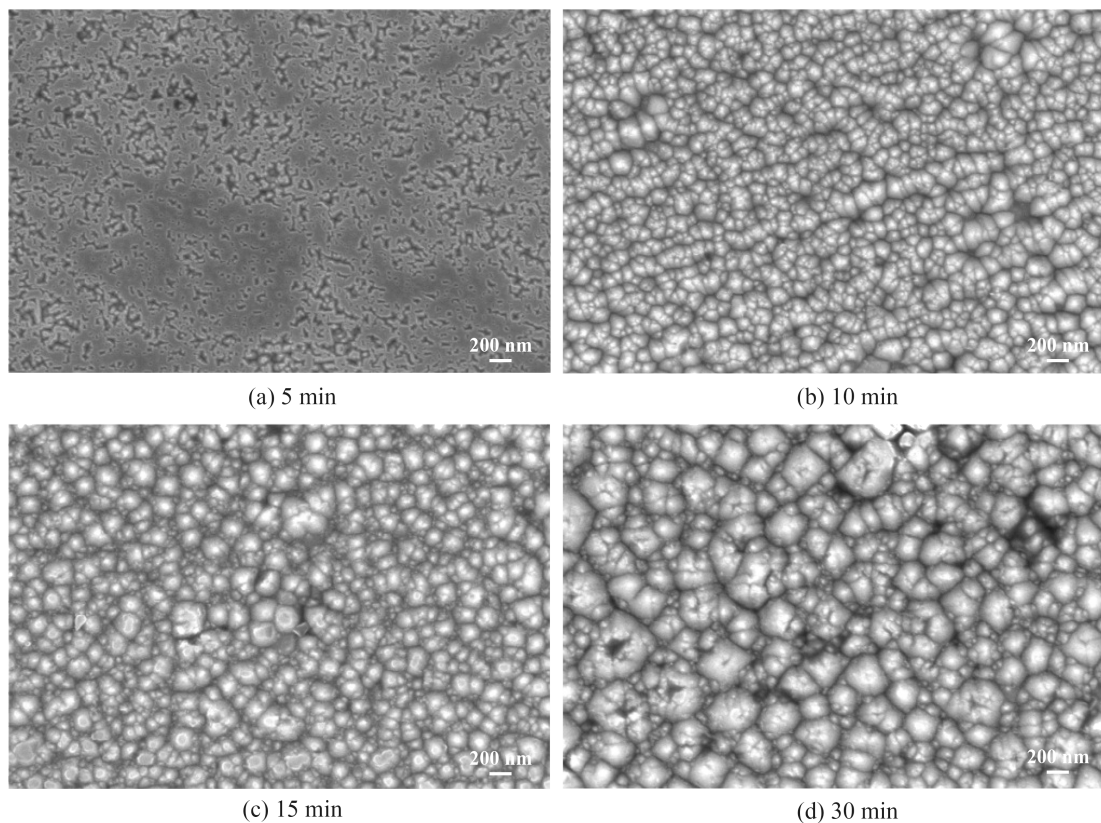


Fig. 1 SEM micrographs of etched silicon in 10% KOH solution

图1 10% KOH腐蚀硅片的扫描电镜图

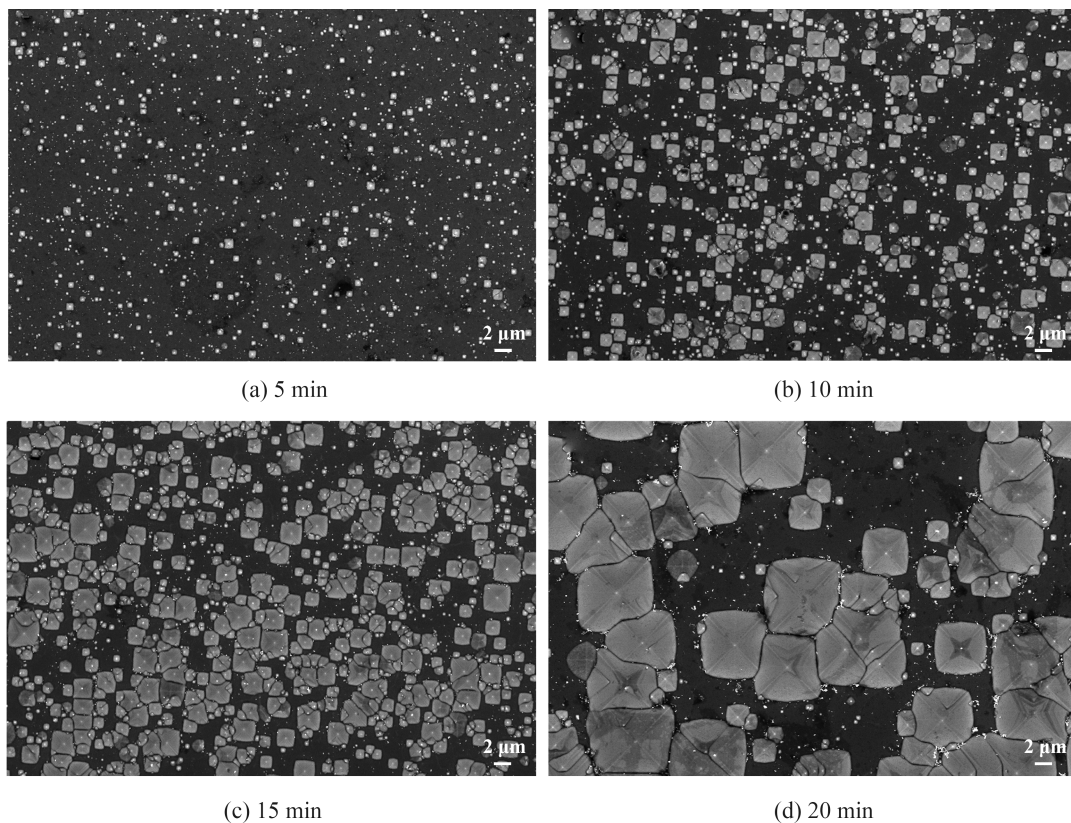


Fig. 2 SEM micrographs of etched silicon in 25% KOH solution

图2 25% KOH溶液腐蚀硅片的扫描电镜图

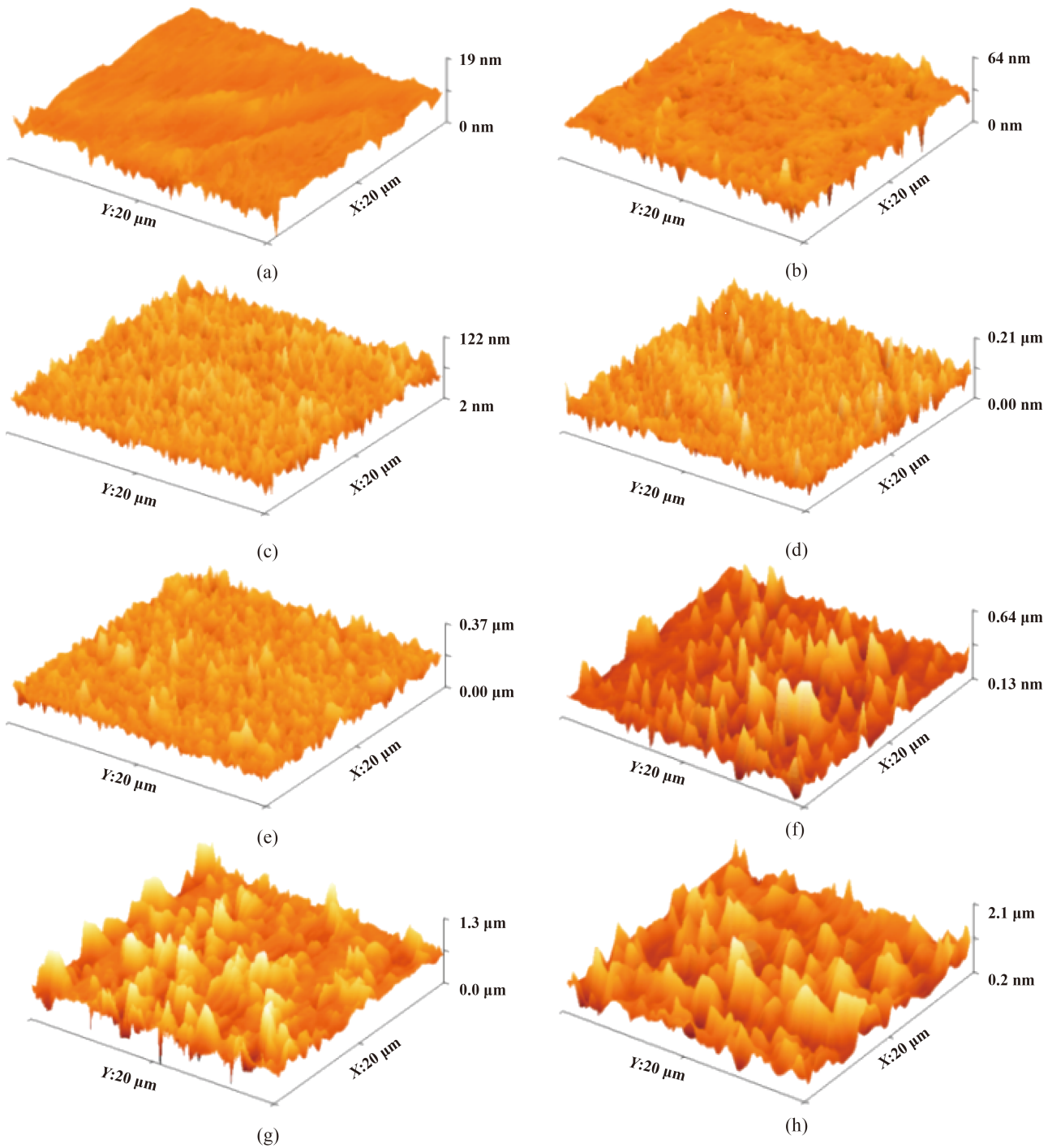


Fig. 3 Topographic AFM images of all the samples
图3 样品的AFM形貌图

$$F = C_N \delta_N = C_N S_Z E_Z U_Z \quad (5)$$

其中: C_N 为探针的法向弹性系数; S_Z 为灵敏度,表示扫描器 z 向电压的变化量与反映探针法向变形的光强计检测电压之比; E_Z 为扫描器的 Z 向伸缩系数. 试验所用的尖探针Budget Sensors的 C_N 为 $0.2 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$, 灵敏度 S_Z 为 10.5 , E_Z 为 $19.881 \text{ nm} \cdot \text{V}^{-1}$; 平头探针的 C_N 为 $0.1 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$, 灵敏度 S_Z 为 9.5 . U_Z 则可以通过力位移曲线获得. 图5分

别给出了尖探针和平头探针的扫描电镜图.

手套箱为Etelux Lab2000, 里面充满99.999%的高纯氮气. 手套箱内水含量和氧含量都可以达到 0.1 mg/L .

2 结果与讨论

2.1 样品表面形貌分析

用 R_a 和 R_q 来表面特征粗糙度, h_{ave} 为表面粗糙峰的平均高度. 每个样品的表面粗糙峰高度分布都近似于

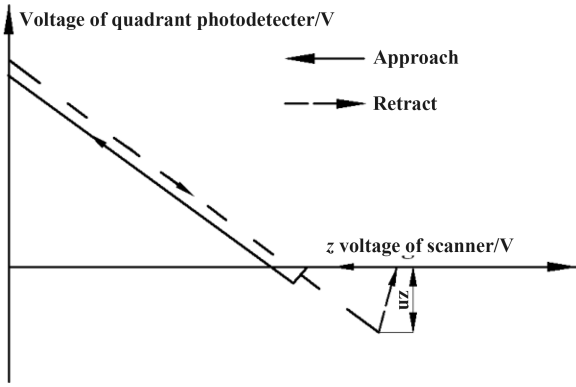


Fig. 4 A typical force-displacement curve
图4 一条典型的力位移曲线

外, 尖探针在测量的时候极易磨损, 造成针尖的曲率半径变大. 因此在测量黏着力之前, 我们采用了较大的载荷在较粗糙的表面进行磨损试验. 磨损后探针的针尖如图6所示. 磨损之后针尖的曲率半径达到500 nm左右.

表1 样品粗糙度分析

Table 1 Roughness analysis of the samples

| Number | Sample | R_q/nm | R_a/nm |
|--------|--------|----------|----------|
| 1 | a | 1.08 | 0.735 |
| 2 | b | 5.27 | 3.46 |
| 3 | c | 13.8 | 11 |
| 4 | d | 24.9 | 19.7 |
| 5 | e | 35.5 | 28.1 |
| 6 | f | 53.9 | 36.2 |
| 7 | g | 145 | 105 |
| 8 | h | 231 | 178 |

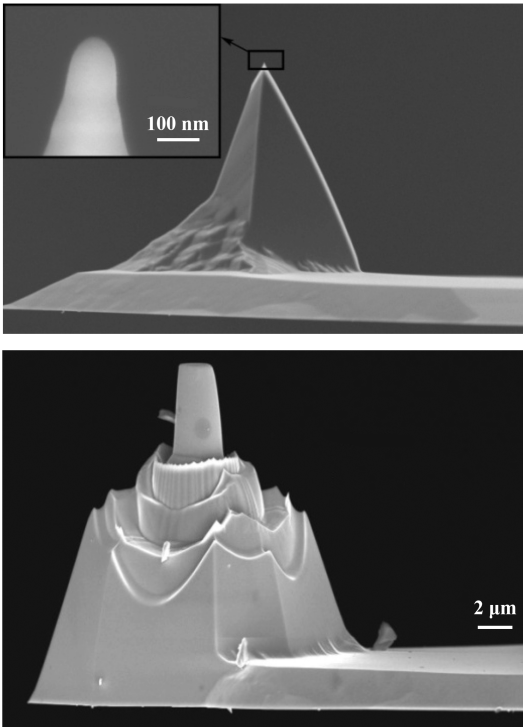


Fig. 5 SEM images of sharp probe and plateau probe
图5 尖探针以及平头探针的SEM图

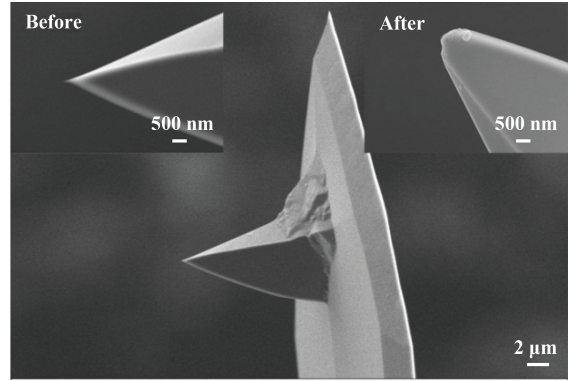


Fig. 6 SEM micrograph of unworn and worn sharp probes
图6 尖探针磨损前后扫描电镜图

高斯分布. R_a 和 R_q 定义如下:

$$R_a = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |h_i - h_{ave}| \quad (6)$$

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{n} \left[\sum_{i=1}^n (h_i - h_{ave})^2 \right]} \quad (7)$$

其中: h_i 是第*i*点处的粗糙峰高度, n 是表面上粗糙峰的数目. 表1为各样品的粗糙度分析.

2.2 尖探针的黏着研究

由于探针针尖每次与表面接触的形貌是有可能改变的, 而不同的接触几何会导致不同的黏着力. 另

在黏着力的测量中, 我们随机选取15个点, 每个点测量50条力曲线, 然后计算出各点的平均值以及标准差. 然后根据不同点的测量值, 计算出整体的平均值. 测量分别在空气中以及在手套箱内进行. 采集力曲线的时候, 法向载荷为180 nN, 加载速率为663 nNs⁻¹, 停留时间为0 s, 空气的相对湿度为60%左右.

图7为Robinson模型计算的黏着力值与试验值. 其中 A_H 为 18.65×10^{20} J, H_0 为0.3 nm, R 为500 nm. 可以看出, 随着粗糙度的增大, 黏着力表现出先减小后增大的趋势. 并且当粗糙度较小的时候, 主要起作用的是非接触部分, 而当粗糙度较大时, 则是接触部分的黏着力起主要作用. 而试验结果总体也呈现出先减小后增大的趋势, 但是在粗糙度很大的情况下, 黏着力变化不是很大, 并不会表现出模型中的增长. 在图7(b)中也发现这样的变化规律. 不同粗糙度在空气中以及在手套箱内的黏着力值很接近, 相差不大. 由于毛细

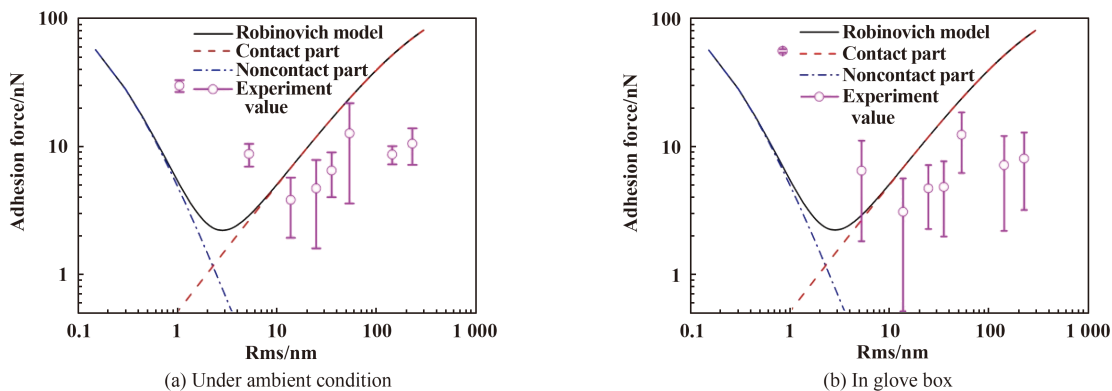


Fig. 7 Adhesion force versus root mean square

图7 黏着力随粗糙度的变化

力以及其他相互作用的影响, 在粗糙度较小时, 试验值会大于Robinovich模型的计算值. 这里, 当表面的粗糙度逐渐增大, 表面粗糙峰的高度以及曲率半径都会相对增大. 当 $R \gg r$ 不满足时, 即探针针尖曲率不能远大于表面粗糙峰的曲率半径时, Robinovich模型的计算结果会与试验结果出现较大偏差.

2.3 平头探针的黏着研究

Rabinovich模型表述的是一个曲率半径为 R 的曲面与表面上曲率半径为 r 的粗糙峰之间的黏着力, 如图8中A所示. 我们用平头探针测量黏着力时, 其接触几何如图8中B所示. 在两表面相互接触时, 粗糙峰会变形, 两表面接触区域会变为一个圆的平面, 而接触面积的大小主要取决于样品表面的弹性变形以及作用载荷的大小. 当曲面的曲率半径 R 远大于样品表面粗糙峰的曲率半径 r 时, A与B两种情况在作用相同大小载荷下的接触面积可以近似相等. 那么可以认为接触部分黏着力近似相等. 而非接触部分的黏着力, B显然大于A.

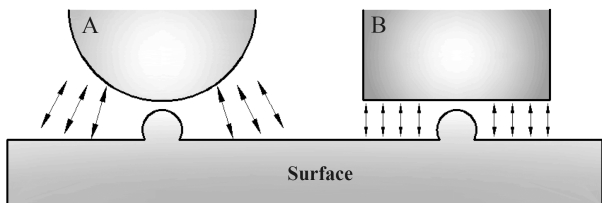


Fig. 8 Contact geometry between probe and sample

图8 探针与样品接触关系图

图9为平头探针测量的黏着力与Robinovich模型的对比. 其中, A_H 为 18.65×10^{-20} J, H_0 为0.3 nm, R 为1 000 nm. 可以看出无论是在手套箱内还是在空气中, 都呈现出与尖探针相似的变化规律. 粗糙度较小时, 黏着力减小较快; 粗糙度较大时, 黏着力变得很小, 并

且有略微的增大, 但不是很明显. 在空气中, 黏着力除了范德华力还有毛细力的存在, 而在手套箱的存在静电力. 因此, 在粗糙度较小时, 测量值比Robinovich模型的计算值要大. 且在空气中黏着力值要大于在手套箱内的值. 当粗糙度变得很大时, Robinovich模型已经不再适用, 黏着力的变化趋近平稳. 对比尖探针以及平头探针在同一环境下的黏着力测量值, 可以发现平头探针测量的黏着力会大于尖探针, 因为接触面积较大. 如平头探针在手套箱内对a样品测量值为 125.5 ± 9.8 nN, 尖探针的测量值为 56.2 ± 1.73 nN.

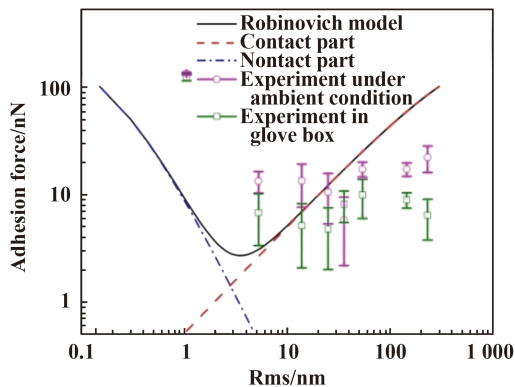


Fig. 9 Adhesion force versus root mean square with plateau probe

图9 平头探针测量的黏着力与粗糙度变化关系

3 结论

a. 在微纳米尺度下, 随着粗糙度的增大可以使得黏着力减小, 但是随着粗糙度不断增大, 黏着力不会一直下降, 而会有略微增大. 同时, MEMS器件表面过于粗糙也会影响使用性能.

b. 当探针针尖曲率半径较小时, 在空气中和在手套箱内测量的黏着力大小差别不是很大. 而当探针针尖较大时, 可以看出湿度越大, 黏着力也会越大.

c. Robinovich模型在粗糙度较小时,相对较好反应出黏着力随粗糙度的变化情况,但是当粗糙度变得很大时,其结果有较大的偏差.

参考文献

- [1] Zaghoul U, Papaioannou G, Bhushan B, et al. On the reliability of electrostatic NEMS/MEMS devices: Review of present knowledge on the dielectric charging and stiction failure mechanisms and novel characterization methodologies [J]. *Microelectronics Reliability*, 2011, 51(9): 1810–1818.
- [2] Zhao Y P, Yu T X. Failure modes of MEMS and microscale adhesive contact theory [J]. *International Journal of Nonlinear Sciences and Numerical Simulation*, 2000, 1(Supplement): 361–372.
- [3] De Boer M P, Michalske T A. Accurate method for determining adhesion of cantilever beams [J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 86(2): 817–827.
- [4] Beach E R, Tormoen G W, Drelich J, et al. Pull-off force measurements between rough surfaces by atomic force microscopy [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2002, 247(1): 84–99.
- [5] Zhang Xiaoliang, Zhong Xiaohua, Yi Gewen, et al. Adhesive and frictional properties of Au nanoparticle-textured surfaces[J]. *Tribology*, 2010, 30(6): 607–613(in Chinese) [张晓亮, 钟小华, 易戈文, 等. Au纳米颗粒结构化表面的黏着和摩擦学研究 [J]. *摩擦学学报*, 2010, 30(6): 607–613].
- [6] Ata A, Rabinovich Y I, Singh R K. Role of surface roughness in capillary adhesion [J]. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 2002, 16(4): 337–346.
- [7] Pourzand H, Tabib-Azar M. Graphene thickness dependent adhesion force and its correlation to surface roughness [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(17): 171603.
- [8] Kendall K, Roberts A D. Van Der Waals forces influencing adhesion of cells [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London B: Biological Sciences*, 2015, 370(1661): 20140078.
- [9] Katainen J, Paajanen M, Ahtola E, et al. Adhesion as an interplay between particle size and surface roughness [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2006, 304(2): 524–529.
- [10] Çolak A, Wormeester H, Zandvliet H J W, et al. Surface adhesion and its dependence on surface roughness and humidity measured with a flat tip [J]. *Applied Surface Science*, 2012, 258(18): 6938–6942.
- [11] Dejeu J, Bechelany M, Philippe L, et al. Reducing the adhesion between surfaces using surface structuring with ps latex particle [J]. *ACS applied materials & interfaces*, 2010, 2(6): 1630–1636.
- [12] Ramakrishna S N, Clasohm L Y, Rao A, et al. Controlling adhesion force by means of nanoscale surface roughness [J]. *Langmuir*, 2011, 27(16): 9972–9978.
- [13] Zhang X, Lu Y, Liu E, et al. Adhesion and friction studies of microsphere-patterned surfaces in contact with atomic force microscopy colloidal probe [J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2012, 401: 90–96.
- [14] Johnson K L, Kendall K, Roberts A D. Surface energy and the contact of elastic solids [J]. *The Royal Society*, 1971, 324(1558): 301–313.
- [15] Derjaguin B V, Muller V M, Toporov Y P. Effect of contact deformations on the adhesion of particles [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1975, 53(2): 314–326.
- [16] Rumpf H. Particle technology [J]. Springer Science & Business Media, 2012, .
- [17] Rabinovich Y I, Adler J J, Ata A, et al. Adhesion between nanoscale rough surfaces: I. Role of asperity geometry [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2000, 232(1): 10–16.
- [18] ZubeI, Kramkowska M. Etch rates and morphology of silicon (hkl) surfaces etched in KOH and KOH saturated with isopropanol solutions [J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2004, 115(2): 549–556.
- [19] Shikida M, Sato K, Tokoro K, et al. Comparison of anisotropic etching properties between KOH and TMAH solutions [J]. *Micro Electro Mechanical Systems*, 1999. MEMS'99. Twelfth IEEE International Conference on. IEEE, 1999: 315–320.
- [20] Marchetti J, He Y, Than O, et al. Efficient process development for bulk silicon etching using cellular automata simulation techniques [J]. *International Society for Optics and Photonics*, 1998: 287–295.