

柔性薄膜材料疲劳失效研究

陈 博, 杨 飞, 李建昌

(东北大学机械工程与自动化学院真空流体工程研究中心, 辽宁 沈阳 110819)

摘 要: 本文从薄膜材料的选择、失效机理、机械性能测试方法和疲劳失效对电学参数影响等方面进行综述。分析了拉伸、弯折对薄膜微观形貌的影响, 以及微裂纹的萌生、扩展以及饱和三个阶段的主要特点。总结了薄膜材料、晶粒大小、薄膜厚度对薄膜疲劳寿命的作用, 进而分析对薄膜电学参数的影响。对薄膜表面、沿厚度方向和界面处疲劳裂纹的可控性进行了展望, 将数学模拟与薄膜疲劳实验现象要更好的结合起来, 可提高二者的符合程度。

关 键 词: 失效机制; 力学性能测试方法; 电学参数

中图分类号: TB43

文献标识码: A

文章编号: 1002-0322(2019)01-0020-07

doi: 10.13385/j.cnki.vacuum.2019.01.05

Studies on fatigue failure of flexible thin film materials

CHEN Bo, YANG Fei, LI Jian-chang

(*Vacuum and Fluid Engineering Research Center, School of Mechanical Engineering and Automation, Northeastern University, Shenyang 110819, China*)

Abstract: In this article, the selection of thin film materials, failure mechanism, mechanical properties test method and fatigue failure are reviewed. The influence of tensile bending on the microstructure of the film and the initiation, electrical properties, expansion and saturation of microcracks were analyzed. The effects of film material, grain size and film thickness on the fatigue life of thin film were summarized. On membrane surface, along the thickness direction and control of fatigue crack was discussed. It is shown that the future studies on mathematical modeling and film fatigue experiment need to be combined together for better results.

Key words: failure mechanism; mechanical properties test method; electrical properties

柔性电子可概括为是将有机 / 无机材料电子器件制备在可延展塑料或薄金属板上的新兴技术, 而柔性存储器又成为未来信息存储的一个主要发展方向^[1], 在诸多存储器中, 阻变存储器由于集成度高, 寿命长, 存储密度高, 制备简单等优势被广泛研究及应用。因此, 柔性阻变存储器汇聚诸多优势, 被世界研究组广泛研究, 尤其针对器件的机械性能进行不同程度的测试 (见表 1 表 2)。研究表明, 无论是无机功能层, 有机功能层, 还是有机无机复合功能层, 器件的开关比在弯折作用下都会呈现不同程度的下降, 针对这种现象, 一些课题组进行过深层次的报道。例如中国科学院研究人员在 PET 柔性衬底上制备了 Cu/ZnO:Mg/ITO 阻变器件。实验将器件一端固定,

另一端从水平弯折成曲率半径为 r 的半弧, 测试低阻态和高阻态的电阻值。结果表明, 曲率半径大于 20mm, HRS 和 LRS 无明显变化, 当曲率半径达到 10mm 时, HRS 和 LRS 电阻明显减小, 这是由于 ZnO:Mg 薄膜的破裂, 造成导电细丝的断裂^[2]。韩国浦项工科大学 Lee 等人在不锈钢上直接沉积氧化锌, 并用金做上电极, 制备 Au/ZnO/Stainless Steel 阻变器件。为研究器件的柔性, 对器件进行外弯折和内弯折测试, 弯折距离 25mm, 高度 13mm。发现内弯器件的阈值电压比外弯器件的阈值电压更小。内外弯之后器件的阈值电压都比弯折前的阈值电压小, 稳定性更好。这归因于 ZnO 晶体呈柱状结晶, 薄膜在受到拉力和压力的同时, 影响晶体形状, 进而改变晶界的形状, 对载

收稿日期: 2018-06-01

作者简介: 陈博(1992-), 男, 辽宁省本溪市人, 硕士生。

通讯作者: 李建昌, 教授、博士生导师。

流子的输运产生影响^[3]。还有许多研究组将目光聚集在外部载荷对功能层的机械疲劳影响上,而忽略了电极、基底等结构在循环载荷下的失效情况。

薄膜-基底结构因其体积小,尺寸精密成为传感器、存储器、晶体管等机械系统不可或缺的部分^[4-5]。而具体的应用范围,又要从材料本身的性质、与器件结构兼容性等方面仔细考虑。而且,力学性能不同于常规器件^[6],特别是受到动态载荷、冲击载荷和疲劳载荷的作用,会出现裂纹、断裂、屈曲和脱层等失效形式,这不仅是因为结构产生较大变形,而且是在非弹性范围内,受到往

复载荷的作用不断消耗能量,在微观缺陷处产生应力集中,导致疲劳失效^[7]。而且薄膜-基底结构的柔性程度主要受到基底、膜层间粘附力、杨氏模量、等影响,拉伸、弯折过程中产生的微裂纹也会对薄膜内部的晶粒、晶界和薄膜与衬底之间界面产生影响,进而影响电阻等电学参数。然而,关于拉伸、弯折对柔性薄膜的失效形式和电学参数的影响规律,尚无进一步的研究。本文将对薄膜-基底材料选择,机械性能测试方法,疲劳失效机理以及对电学特性影响结合国内外进展进行阐述分析。

表 1 弯折对无机柔性薄膜阻变特性影响

Table 1 Effect of bending on inorganic film resistive switching characteristics

柔性基底	下电极	薄膜	内/外弯折	弯折半径	弯折次数	开关比	电阻影响	文献
PI	Cu	TiO ₂	外弯	10mm	1000	100	Cu/TiO ₂ /W 稳定;其余结构衰退	8
塑料衬底	Cu	InGaZnO	内、外弯	10-5mm	10 ⁵	10 ³	阈值电压稍有增加	9
PI	TaN	GeOx/HfON	外弯	30-9mm	10 ⁵	9 × 10 ²	无影响	10
塑料衬底	TaN	TiOy/GeOx	外弯	——	10 ⁵	30	无影响	11
PES	ITO	ZnO	外弯	20-50mm	10 ⁴	100	高低阻态电阻均下降	12
PES	Al	TiO ₂	外弯	11-71mm	10 ⁵	100	高低阻态电阻均下降	13
PET	Al	Alq ₃ /ZnSe	内、外弯	14mm	15	1.9 × 10 ³	开关比下降	14
PI	Al	ZnO	外弯	20mm	100	100	无影响	15
PET	Cu	Gd ₂ O ₃	外弯	20-2mm	10 ⁴	10 ⁵	阈值电压减小	16
PET	ITO	ZnO:Mg	外弯	20mm	1000	——	无影响(10mm 电阻减小)	17
PI	Au	ZnO NWs	外弯	20mm	100	无明显变化	无明显变化	18
PET	ITO	NP WO _{3-x}	外弯	5.53mm	1000	10 ⁵	无明显变化	19
PET	SiNW	Al ₂ O ₃ /ZnO	外弯	11.3mm	1000	——	无明显变化	20

表 2 弯折对有机柔性薄膜阻变特性影响

Table 2 Effect of bending on organic membrane resistive switching characteristics

柔性基底	下电极	薄膜	内/外弯折	弯折半径	弯折次数	开关比	电阻影响	文献
PET	ITO	CsPbBr ₃ /PEDOT:PSS	内/外弯	——	100	无明显变化	无明显变化	21
PET	ITO	hBN-PVOH	外弯	50-10mm	10 ⁵	10 ³	阈值电压稍有增加	22
PET	Ag	PVOH-ZnSnO ₃	外弯	15mm	1500	——	无明显变化	23
PET	Ag	PVP:GQD	外弯	35-15mm	200	10 ³	15mm 器件破坏	24
PES	Pt	PEO/PVK	外弯	——	2000	8.4 × 10 ⁵	——	25

1 基底材料

柔性基底材料不但有很好的光电特性,而且具有轻薄便携、弯折变形、不易破碎等优点,还可以采用卷对卷工业化连续生产方式,有利于提高效率、便于运输。目前的有机柔性衬底主要有以下几种;聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)、NOA63、丝素蛋白(SF)、聚乙烯醇(PVA)、聚醚亚胺(PI)、MCE、PEN、塑料衬底等。PET是目前最为常见的柔性基底材料,尺寸稳定性好、耐高温、电绝缘性良好。PI有很好的耐低温和耐高温性质,而且抗拉伸,常用于柔性印刷电路板基板和绝缘材料。丝素蛋白属于天然蛋白质,具有良好的生物降解性、人体亲和力、良好的光电性能。但是在高温、低温等环境下大大限制了其使用^[26]。聚乙烯醇耐光性好,可用于光电器件的应用,而且无毒无刺激,也可用于皮肤传感器。

2 电极材料

柔性阻变器件的底电极种类很多。目前,主要的柔性电极有金属电极、金属氧化物电极、柔性有机电极。金属膜具有导电性能好的优点,但是透光率低,价格昂贵,并且纯金属和硬度都不高,很大程度上限制了它在柔性电子方面的使用,而且它的主要用途在电磁屏蔽方面。金属氧化物薄膜有很好的耐热和耐腐蚀性能,并且光电性能也很出色,但是其耐弯性差,而不适合应用在柔性电子方面。其中,ITO是目前应用最为广泛的氧化物,导电性能和透光率都很出色,但是原料资源稀少、质地脆的特点也影响了它的使用^[27]。金属氧化物复合薄膜具有电阻低、光透过率高等优点,缺点是复合界面会产生化学反应,从而影响其热稳定性、电阻率等其他因素^[28]。高分子聚合物薄膜具有柔韧性好、强度高、延展性能好的特点,被认为是最具应用价值的导电薄膜之一。其缺点就是导电性能相对比较差。管状膜(碳纳米管)、线状膜(银纳米线)、点状膜(碳纳米点)等能同时具备导电性能好,柔性好的优点^[29]。

3 机械疲劳失效与机理研究

对薄膜的疲劳失效研究已经有 150 年左右的历史。早期对疲劳现象的研究仅局限在薄膜表面形貌上,但随着光学显微镜和电子显微镜的飞速发展,促进了对薄膜微观失效形式的探究。研究人员采用拉伸、弯折、扭转等试验方法在薄膜

结构上施加循环载荷,观测薄膜微观形貌的变化和产生机理。

3.1 拉伸试验

薄膜在拉伸状态下产生的微裂纹有两种:一种是在晶粒内部,即穿晶裂纹;一种是在晶界处,即沿晶裂纹。这取决于晶粒尺寸和薄膜的厚度。微观结构导致裂纹的疲劳行为极大地受到局部微观特性的影响,例如晶粒、亚晶粒或者相界、晶粒取向、残余应力和位错结构。柔性基底上薄膜试样的断裂等是由于位错的运动产生的,而位错源主要有两种:一种是晶界;另一种是薄膜边缘,很少发现位错源在晶粒内部或第二相处。晶界作为位错源,通过发射位错以及位错的运动就会使晶界的局部区域减薄,当减薄到一定程度后,微裂纹将在晶界处形核。

对于金属薄膜疲劳失效研究,东北大学材料与冶金学院张滨^[26]以聚醚亚胺为基体分别制备了厚度为 $0.3\mu\text{m}$ 和 $0.8\mu\text{m}$ 的微米厚金属铜薄膜和 $3.2\mu\text{m}$ 亚微米厚金属铜薄膜,在 MTS 微力实验系统上进行循环拉伸实验,利用基体的高弹性变形测定了铜薄膜的屈服应力,并通过 SEM 发现, 0.3 和 $0.8\mu\text{m}$ 厚金属铜薄膜内部存在孪晶,而且裂纹出现在孪晶附近,错位数量减小而 $3.2\mu\text{m}$ 金属铜薄膜错位数量明显很多。结果表明:亚微米厚度铜薄膜的抗疲劳损伤强度明显高于微米厚铜膜的抗疲劳损伤强度。原因在于:(1)薄膜的厚度越薄,薄膜内部的位错运动就会受到限制,所需运动的切应力就会越大;(2)Hall-Petch 细晶强化理论提出,超细晶粒也会提高薄膜抗疲劳强度;(3)孪晶的存在对位错运动也会产生很大抑制作用,可以提高硬度,降低塑性。另一方面,中国科学院金属研究所张广平用磁控溅射法在 $125\mu\text{m}$ 厚有机聚合物基体上分别制备了 $3.0\mu\text{m}$ 、 $0.8\mu\text{m}$ 和 $0.4\mu\text{m}$ 的铜薄膜,采用循环拉-零加载的方式对薄膜进行疲劳试验,用 FIB 和 SEM 对薄膜的疲劳裂纹萌生和位错结构进行表征。发现薄膜厚度越薄,裂纹萌生处由晶粒内部逐步转向界面处,例如在孪晶界附近^[30]。通过 TEM 发现疲劳后薄膜内部的位错结构,薄膜的厚度减小,位错现象也会明显减小,从而体现了铜薄膜疲劳裂纹萌生的尺寸效应。薄膜较厚时,内部会出现块体材料的疲劳损伤行为;当薄膜厚度减小,就会体现柔性基底对薄膜位错运动的约束作用,疲劳裂纹优先出现在应力集中的界面处。

对于金属氧化物薄膜机械性能的研究,

Medico^[31]等人发现,对 ITO 薄膜进行拉伸实验时,裂纹会先从缺陷处开始萌生。并且当裂纹长度是膜厚100 倍时,裂纹生长会由一个稳定的状态转变成一个不稳定状态。这种疲劳失效使电极电阻升高了 10%左右,表明了裂纹生长控制着器件电学特性的损耗。而且裂纹萌生应力遵循经典疲劳机理,与薄膜的厚度成反比。

拉伸实验常用方法,如图 1 所示,欧姆计与样品相接,且两侧被固定装置加持,测试通过调控两端距离实现样品的拉伸,同时薄膜厚度和宽度也发生变化。此装置可以改变不同拉伸率和拉伸次数。欧姆计连在样品两端,两夹板的初始距离设定 160mm,两测试点的距离设定 100mm。在不同的拉伸时间下,可以检测样品电阻。同时用光学显微镜对不同拉伸率下(2,10,20,30,40,50% 应力水平)的裂纹进行表征。同时每增加 2%应力,测试电阻。利用点测法,可以快速测量电阻,避免电子迁移率的干扰^[32]。

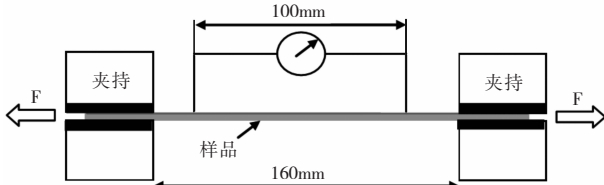


图 1 典型柔性拉伸装置

Fig.1 Schematic system for a typical flexible stretching device

3.2 弯折试验

拉伸试验是通过单轴或双轴拉伸,观测薄膜的断裂端口位置,比较其机械性能。而弯折测试更偏重测试薄膜的弯曲力学性能,可以探究薄膜-基底结构粘附性,以及脆性塑性指标。而且,导电薄膜在弯折状态下,电学特性也会受到影响,主要是弯折导致了薄膜的疲劳损坏,例如薄膜表面微裂纹、沿薄膜厚度方向裂纹和脱层等现象。因此,研究薄膜在弯折状态下的失效形式对提高薄膜的电学特性有很大的意义。

薄膜在弯折状态下产生的疲劳失效形式经历三个阶段:裂纹萌生、裂纹生长和裂纹区域饱和。而裂纹主要发生在薄膜表面缺陷处,薄膜厚度方向和界面处。Yang 等人将 Ag 金属网格 FTE 沉积在 PET 上,弯折之后发现,沿晶粒边界会产生微裂纹。通过改变柔性基底的厚度,FTE 生成的微裂纹数量也产生变化,衬底越薄,微裂纹数越少^[33]。相比其它失效形式,例如破裂、空隙、山堆,这种失效形式是由于位错的运动产生的,而位错源主要有两种:一种是晶界;另一种是薄膜

边缘,很少发现位错源在晶粒内部或第二相处。晶界作为位错源,通过发射位错以及位错的运动就会使晶界的局部区域减薄,当减薄到一定程度后,微裂纹将在晶界处形核。同时,对于基底影响薄膜疲劳寿命。王建国团队^[34]进行了深入研究,针对不同厚度基底对薄膜裂纹的影响,研究其力学行为,得到基底与薄膜不同的弹性错配与基地的不同厚度比例,基底与薄膜不同的弹性错配。发现随着基底厚度与薄膜厚度比值的减小,应力强度随之提高。当比值大于 10 时,基底的厚度对薄膜裂纹的影响可以忽略不计。

沉积在基底上薄膜表面应变可以认为:

$$\varepsilon = \frac{t_s}{2R} \quad (1)$$

弯曲半径为:

$$R_{nom} = \frac{L}{2\pi \sqrt{\frac{dL}{L} - \frac{\pi^2 t_s^2}{12L^2}}} \quad (2)$$

其中应变为:

$$\varepsilon = \frac{t_s}{2R_{nom}} \quad (3)$$

其中 t_s 代表薄膜和基底总厚度, L 为薄膜原始长度, dL 为薄膜弯折后减少的长度。

目前的弯折测试一般可以分为内弯和外弯。如图 2 所示,外弯折指薄膜表面承受张应力,薄膜微元之间距离变大;内弯折指薄膜表面承受压应力,薄膜微元之间距离变小。外弯折易导致薄膜产生纵向裂纹。内弯折情况下,薄膜容易产生皱褶甚至脱落。在对柔性电子器件进行机械疲劳测试时,通过改变弯折方向,弯折半径和弯折次数,对比分析电学特性的变化量来评估电子器件的机械性能。其中,改变弯折半径和弯折次数分别能够检验器件的弯折极限和弯折耐性。

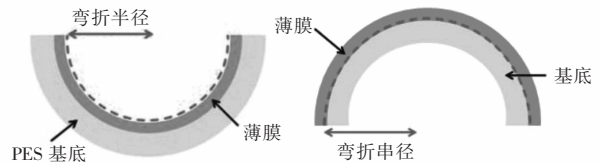


图 2 (a)内外弯折的物理模型;(b)外弯折的物理模型

Fig.2 Physical models of (a)inside and (b)outside bending

通过了解弯折方式对器件的疲劳影响之后,我们将对目前实验组采用的弯折装置进行简单的归纳总结。部分研究组采用手动测试方法测试器件的耐弯折性,优点是方便快捷,但缺点却有很多,例如手对器件材料的污染、弯折参数的不准确等。同时,对人身安全也会有影响。图 3(a)展

示的是一种自动器件机械性能测试装置^[35],可以对柔性器件进行比较全面的机械性能测试。弯折半径的改变受控于两个加持装置的左右移动。通过设定电极的转速以及转动时间可以改变弯折次数,实现循环测试。该设备的优点是方便测试、性能稳定以及机械性能参数准确。缺点是无法进行原位测试以及实时监测器件的疲劳变化。因此,D.W. Mohamme 改进了该装置,将测视数字成像系统安装在两端,这样会使实验结果更加准确。同时,放置样品位置配有原位光学显微镜,每间隔一段时间即会拍一张照片,可以实时观测器件的裂纹生长跟所受应力之间的关系。除此之外,Mohammad^[36]研究组推出的循环弯折装置可以同时兼顾内外和外弯的需求,如图 3(b),当模具不运动时,薄膜承受压力为 0,此时的平面为中性轴。弯折实验开始,两个模具夹持薄膜沿垂直方向循环运动,在模具上升的过程中,薄膜表面承受张应力,即外弯实验。当模具下降时,薄膜表面承受压应力,即内弯实验。压应力和拉应力可以通过公式 $\sigma = My/Ix$ 得到。其中 m 为弯矩, y 为点到中性轴的垂直距离, Ix 为薄膜截面惯性矩。该装置最大优点可以快速转换弯折方向,但缺点是模具对薄膜器件表面会产生一定程度磨损,在测试之间,要对薄膜表面进行保护。

随着柔性电子器件的发展,柔性测试装置除了检测器件的机械性能,还要表征样品的其他特性。T.S. Bejital 等^[37]研发出一种可以测试柔性薄膜机械性能和疲劳腐蚀的实验装置图 3(c)。如图所示,样品的一段固定在 c-pvc 的圆轴上,另一端固定在聚乙烯制成的圆盘上,圆盘通过低张力弹簧相连。而且圆盘半径大于卷轴,底面处于同一水平线,防止样品松弛。实验开始,通过电机带动卷轴转动,改变转速来测量其耐弯折特性。目前关于柔性薄膜的疲劳寿命研究,主要聚焦在裂纹对薄膜电阻或特性的影响,所以通过机械性能测试确定器件疲劳寿命,对薄膜材料安全设计以及寿命预测有很重要的作用。

4 疲劳失效对电学特性的影响

通过研究发现,薄膜在循环应力作用下会出现不同程度的断裂情况。为了更好地理解这种断裂失效对电学参数的影响,国内外学者也做了相关实验。Jung 等人将石墨烯沉积在 PET 上制备柔性透明导电,通过内外弯的方式研究其电学特性,发现内弯 2000 次,电阻未发生明显变化,而外弯

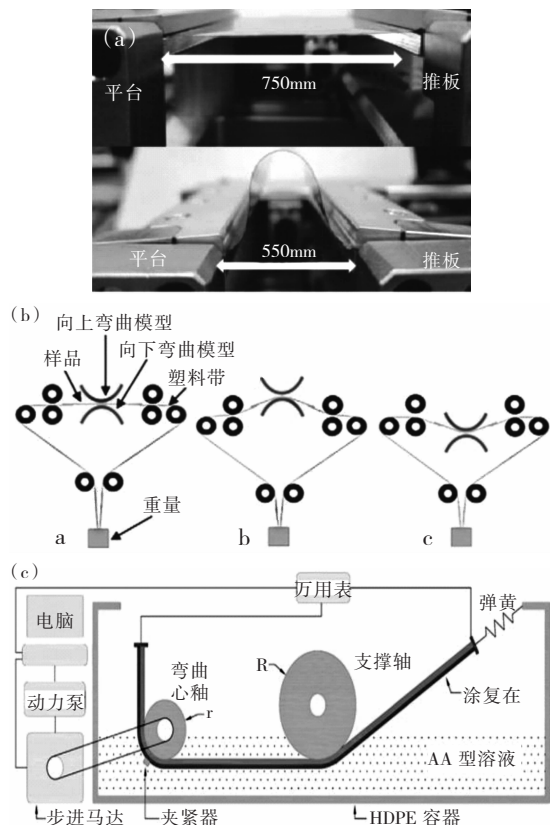


图 3 (a)连续弯折机械应力测试装置;(b)柔性电子测试装置结构;(c)柔性电子测试装置结构

Fig.3 (a) Mechanical stress vehicle used for the successive bending test; (b) flexible electronic testing setup structure, and (c) flexible electronic testing setup structure

2000 次,电阻明显增大,研究者将这一现象归因于外弯导致石墨烯中晶粒之间产生裂纹,进而影响载流子的输运。很多研究组探究了弯折对于电极薄膜电阻的影响(见表 3)。对此,首尔大学 Kim 等人用电阻原位检测方法对基于柔性衬底的铜电极进行弯折疲劳测试,发现铜电极电阻升高归因于疲劳损坏的演变,如公式:

$$R(N) = \rho_0 \frac{(l-s)}{A} + (\rho_0 + \Delta\rho(N)) \frac{s}{A} \quad (4)$$

其中 R 代表弯折之后薄膜电阻的变化, N 代表弯折次数, ρ_0 代表初始电阻率, l 代表样品的总长度, s 代表破坏区长度, A 代表薄膜的横截面积, $\Delta\rho(N)$ 代表 N 弯折之后,电阻率的变化。其可由公式:

$$R_0 = \rho_0 \times \frac{l}{A} \quad (5)$$

$$\Delta\rho(N) = (R(N) - R_0) \frac{A}{s} = \Delta R(N) \frac{A}{s} \quad (6)$$

求出。

5 总结与展望

柔性阻变存储器因其体积小、存储密度高、

表 3 弯折对柔性电极电阻影响

Table 3 Bending effect on the resistance of flexible electrode

柔性基底	底电极	内 / 外弯折	弯折次数	电阻影响	文献
NOA63	AgNWs	外弯	1000	——	38
NOA63	RGO-AgNWs	外弯	1000	$480\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	39
SF	AgNWs	外弯	1000	小于 $20\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	26
PET	AgNWs	外弯	1500	$104\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	40
PET	NiO/Ag/NiO	外弯	2000	$9.8\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	33
MCE	AgNWs	内 / 外弯	250	$11.3\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	41
PET				$13.7\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	
PVA				$12.6\Omega \cdot \text{sq}^{-1}$	
PI	GZO	外弯	1000	——	42
塑料衬底	IZO	内弯外弯	1000	——	43

可携带等优点被世界广泛研究,但研究者们往往将目光聚焦在循环载荷对功能层的破坏上,忽略了对电极的影响。随着高度集成电路的发展和微型结构在电子器件中的应用,对薄膜 / 基底结构疲劳形式的探究已经逐渐成熟,现有研究主要从不同材料入手,研究薄膜表面、截面和薄膜 / 基底之间的疲劳失效情况。通过实验发现,薄膜材料、厚度和表面缺陷对裂纹生长位置有重要影响。而外部因素,例如外部载荷、拉伸长度、弯折半径等,对于薄膜的失效程度有着重要作用。综合以上分析,可以发现,对于薄膜疲劳失效的研究还是局限于损伤的事后分析,很难在测试之前分析加载对薄膜的疲劳影响。而且针对裂纹的萌生和扩展也没发现准确的规律,虽然目前有研究组采用数学建模的方法模拟薄膜的疲劳失效过程,但也无法完全重现真实情况,与现实有一定的差异。这也为以后的研究工作提供了新的要求,例如对裂纹的生长进行可调控制,提高数学模拟结果与薄膜疲劳失效过程的相符精度。

参考文献

[1] 柴玉华,郭玉秀,卞伟,等. 柔性有机非易失性场效应晶体管存储器的研究进展 [J]. 物理学报, 2014, 63(2): 259-275.

[2] Kim S, Choi Y K. Resistive switching of aluminum oxide for flexible memory[J]. Applied Physics Letters, 2008, 92 (22): 139.

[3] Lee S, Kim H, Yun D J, et al. Resistive switching characteristics of ZnO thin film grown on stainless steel for flexible nonvolatile memory devices[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(95):262113.

[4] Freund L, Suresh S. 薄膜材料:应力、缺陷的形成和

表面演化 [M]. 北京: 科学出版社, 2007. Freund L, Suresh S. Thin film materials: Stress, defect formation, and surface evolution [M]. Beijing: Science Press. 2007.

[5] Baumert E K, Theillet P O, Pierron O N. Fatigue resistant silicon films coated with nanoscale alumina layers [J]. Scripta Materialia, 2011, 65: 596-599.

[6] 刘金娜,徐滨士,王海斗,等. 薄膜疲劳失效预测方法与损伤机制的研究进展[J]. 机械工程学报, 2014, 50(20):26-34.

[7] 王习术.材料力学行为试验与分析[M].北京:清华大学出版社, 2007.WANG Xishu. Test and analysis on mechanical behavior of materials [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2007.

[8] 武长强. 基于 TiO₂ 柔性阻变存储器性能研究 [D]. 天津理工大学, 2013.

[9] Wang Z Q, Xu H Y, Li X H, et al. Flexible Resistive Switching Memory Device Based on Amorphous InGaZnO Film With Excellent Mechanical Endurance [J]. IEEE Electron Device Letters, 2011, 32(10): 1442-1444.

[10] Cheng C H, Chou K Y, Chin A, et al. Very high performance non-volatile memory on flexible plastic substrate [C]. Electron Devices Meeting. IEEE, 2010: 21.5.1-21.5.4.

[11] Chou K I, Cheng C H, Zheng Z W, et al. RRAM on Flexible Substrate With Excellent Resistance Distribution [J]. IEEE Electron Device Letters, 2013, 34 (4): 505-507.

[12] Seo J W, Park J W, Lim K S, et al. Transparent flexible resistive random access memory fabricated at room temperature [J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(13): 1269.

[13] Kim S, Yarimaga O, Choi S J, et al. Highly durable and flexible memory based on resistance switching [J]. Solid State Electronics, 2010, 54(4): 392-396.

- [14] Onlaor K, Tunhoo B, Thiawong T, et al. Electrical properties and switching mechanisms of flexible organic-inorganic bistable devices [J]. *Applied Physics A*, 2013, 112(2):495-500.
- [15] Kim S, Moon H, Gupta D, et al. Resistive Switching Characteristics of Sol - Gel Zinc Oxide Films for Flexible Memory Applications [J]. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 2009, 56(4):696-699.
- [16] Zhao H, Tu H, Wei F, et al. High mechanical endurance RRAM based on amorphous gadolinium oxide for flexible nonvolatile memory application [J]. *Journal of Physics D Applied Physics*, 2015, 48(20):205104.
- [17] Shi L, Shang D S, Sun J R, et al. Flexible resistance memory devices based on Cu/ZnO:Mg/ITO structure [J]. *physica status solidi(RRL)-Rapid Research Letters*, 2010, 4(12):344 - 346.
- [18] Park S, Lee J H, Kim H D, et al. Resistive switching characteristics of sol - gel based ZnO nanorods fabricated on flexible substrates [J]. *physica status solidi (RRL) -Rapid Research Letters*, 2013, 7(7):493-496.
- [19] Ji Y, Yang Y, Lee S K, et al. Flexible Nanoporous WO_{3-x} Nonvolatile Memory Device [J]. *ACS Nano*, 2016, 10(8):7598-7603.
- [20] Park S, Cho K, Kim S. Memory characteristics of flexible resistive switching devices with triangular-shaped silicon nanowire bottom electrodes [J]. *Semiconductor Science & Technology*, 2015, 30(5):055019.
- [21] Liu D, Lin Q, Zang Z, et al. Flexible All-Inorganic Perovskite CsPbBr₃ Nonvolatile Memory Device [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, 9(7):6171-6176.
- [22] Siddiqui G U, Rehman M M, Yang Y J, et al. A two-dimensional hexagonal boron nitride polymer nanocomposite for flexible resistive switching devices[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2017, 5(4):862-871.
- [23] Siddiqui G U, Rehman M M, Choi K H. Enhanced resistive switching in all-printed, hybrid and flexible memory device based on perovskite ZnSnO₃, via PVOH polymer[J]. *Polymer*, 2016, 100:102-110.
- [24] Ali J, Siddiqui G, Yang Y J, et al. Direct synthesis of graphene quantum dots from multilayer graphene flakes through grinding assisted co-solvent ultrasonication for all-printed resistive switching arrays [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(6):5068-5078.
- [25] Seung H M, Kwon K C, Lee G S, et al. Flexible conductive-bridging random-access-memory cell vertically stacked with top Ag electrode, PEO, PVK, and bottom Pt electrode[J]. *Nanotechnology*, 2014, 25(43):435204.
- [26] 刘玉强. 丝素蛋白基底柔性有机光电子器件 [D]. 苏州大学, 2016.
- [27] 张滨, 孙恺红, 刘永东, 等. 亚微米厚铜薄膜的微观结构及疲劳损伤行为[J]. *金属学报*, 2006, 42(1):1-5.
- [28] 蓝秋明, 李嘉宝, 何鑫, 等. 石墨烯 / 银纳米线复合透明导电薄膜光电性能及稳定性研究[J]. *人工晶体学报*, 2015, 44(12):3788-3792.
- [29] Alzoubi K, Hamasha M M, Lu S, et al. Bending Fatigue Study of Sputtered ITO on Flexible Substrate [J]. *Journal of Display Technology*, 2011, 7(11):593-600.
- [30] 张广平, 高岛和希, 肥後矢吉. 微米尺寸不锈钢的形变与疲劳行为的尺寸效应 [J]. *金属学报*, 2005, 41(4):337-341.
- [31] Leterrier Y, M é dico L, Demarco F, et al. Mechanical integrity of transparent conductive oxide films for flexible polymer-based displays [J]. *Thin Solid Films*, 2004, 460(1 - 2):156-166.
- [32] Hamasha M M, Alzoubi K, Iii J C S, et al. A study on crack propagation and electrical resistance change of sputtered aluminum thin film on poly ethylene terephthalate substrate under stretching [J]. *Thin Solid Films*, 2011, 519(22):7918-7924.
- [33] Yang S M, Lee Y S, Jang Y, et al. Electromechanical reliability of a flexible metal-grid transparent electrode prepared by electrohydrodynamic (EHD) jet printing [J]. *Microelectronics Reliability*, 2016, 65:151-159.
- [34] 王建国, 刘宝良, 毕贤顺. 双复合材料结构基底厚度对薄膜裂纹的影响[J]. *黑龙江科技大学学报*, 2007, 17(4):251-253.
- [35] Hsu C W, Lo C L, Wang I T, et al. High-density 1S1R Flexible Bipolar Resistive-Switching Memory[C]. *International Conference on Solid State Devices and Materials*. 2015.
- [36] Hamasha M M, Alzoubi K, Lu S, et al. Durability study on sputtered indium tin oxide thin film on Poly Ethylene Terephthalate substrate [J]. *Thin Solid Films*, 2011, 519(18):6033-6038.
- [37] Bejital T S, Compton D, Sierros K A, et al. Electromechanical reliability of flexible transparent electrodes during and after exposure to acrylic acid [J]. *Thin Solid Films*, 2013, 528(3):229-236.
- [38] 崔海峰. 银纳米线电极在有机电致发光器件中的应用研究 [D]. 吉林大学, 2015.
- [39] 李云飞, 陈洋, 毕宴钢, 等. 还原石墨烯氧化物 - 银纳米线柔性复合电极的制备与性能研究 [J]. *发光学报*, 2015, 36(5):545-551.
- [40] 李丹. 纳米线透明导电薄膜的制备及应用 [D]. 北京化工大学, 2016.
- [41] 王亚洁. 纳米银线柔性透明导电薄膜的制备及其性能研究 [D]. 华东师范大学, 2012.
- [42] 车丙晨, 朱超挺, 谭瑞琴, 等. PI 柔性衬底上 Ga 掺杂 ZnO 透明导电薄膜的常温制备及特性研究 [J]. *真空科学与技术学报*, 2015, 35(12):1507-1512.
- [43] 李娜, 张琼, 卢婧, 等. InZnO 薄膜透明导电的制备及其柔性的表征[J]. *大学物理实验*, 2014, v.27;No.107(4):6-9.