

文章编号 1004-924X(2018)01-0070-07

脉冲激光沉积薄膜的残余应力测量

董恺琛^{1,2,3}, 娄 帅², 姚 杰^{2,3}, 吴军桥^{2,3}, 尤 政^{1*}

- (1. 清华大学 精密仪器系 精密测试技术及仪器国家重点实验室
北京市未来芯片技术高精尖创新中心, 北京 100084;
2. 美国加州大学 伯克利分校 材料科学与工程系, 伯克利 94720;
3. 美国劳伦斯伯克利国家实验室 材料科学部, 伯克利 94720)

摘要:为了测量脉冲激光沉积法制备的小面积薄膜的残余应力,并解决 Stoney 公式在特定情况下误差较大的问题,本文提出了一种基于悬臂梁结构和数值计算的薄膜残余应力测量方法。该方法以初始曲率为零的原子力显微镜探针作为衬底梁,在衬底梁上使用脉冲激光沉积方法沉积被测薄膜,并记录衬底梁在薄膜沉积前后的翘曲形貌变化,再结合薄膜厚度、衬底梁几何尺寸、所涉及材料的杨氏模量与泊松比等其他参数,借助数值计算对实验数据进行分析,得出被测薄膜的残余应力。使用该方法测出:基于脉冲激光沉积法在高温环境下制备的二氧化钒薄膜的残余应力为-340 MPa,与文献报道的结果相符。本文提出的基于悬臂梁结构和数值计算的薄膜残余应力测量方法具有适用范围广、准确度好、实验成本低的优点。

关键词:脉冲激光沉积;残余应力;二氧化钒;薄膜;悬臂梁;数值计算

中图分类号:TH704;TH87 **文献标识码:**A **doi:**10.3788/OPE.20182601.0070

Measurement of residual stresses in pulsed laser deposited thin films

DONG Kai-chen^{1,2,3}, LOU Shuai², YAO Jie^{2,3}, WU Jun-qiao^{2,3}, YOU Zheng^{1*}

- (1. *Beijing Innovation Center for Future Chip, State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, Department of Precision Instrument, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*
 - 2. Department of Materials Science and Engineering, University of California, Berkeley, California 94720, USA;*
 - 3. Materials Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA)*
- * Corresponding author, E-mail: yz-dpi@mail.tsinghua.edu.cn

Abstract: To measure the residual stresses in thin films with limited area prepared by pulsed laser deposition, as well as to solve the problem of the relatively large error introduced by the Stoney equation under certain circumstances, a measurement method for residual stresses in thin films based on cantilever structures and numerical calculation was proposed in this article. In this method, atomic force microscopy probes with zero initial curvature were used as substrate cantilevers, and thin films

收稿日期:2017-07-10;修订日期:2017-08-31.

基金项目:中国国家留学基金资助项目(No. 201406210211)

were deposited on the substrate cantilevers using pulsed laser deposition. The bending profiles of the substrate cantilevers before and after thin film deposition were recorded and used in numerical calculation, together with other parameters including the thin film thicknesses, the geometries of the substrate cantilevers, and the Young's moduli and the Poisson's ratios of the involved materials, to analyze the experimental data and obtain the residual stresses in the thin films. By using this method, the residual stress in vanadium dioxide thin films, prepared by pulsed laser deposition in a high-temperature environment, is measured to be -340 MPa, corresponding to the value reported in the literature. The measurement method for residual stresses in thin films proposed in this article, which is based on cantilever structures and numerical calculation, has the advantages of wide versatility, good accuracy, and low costs.

Key words: pulsed laser deposition; residual stress; vanadium dioxide; thin film; cantilever; numerical calculation

1 引言

薄膜是微机电系统(Micro-Electro-Mechanical Systems, MEMS)的基本组成部分,其内部的残余应力对 MEMS 器件的机械性能起到了至关重要的影响^[1-5]。随着技术的进步,厚度在 $1\ \mu\text{m}$ 上下的超小型 MEMS 可动机械结构被研发出来^[6-7]。但这类超薄结构容易因应力失配问题发生严重翘曲,从而影响器件性能,因此需要改进薄膜残余应力的测量方法,为 MEMS 器件的设计提供更可靠的材料属性。

测量薄膜残余应力的传统方法为基于 Stoney 公式的曲率测量技术,此方法主要涉及到薄膜与衬底两种结构^[3,8],具有两个前提条件:(1)衬底的厚度远大于薄膜厚度;(2)实验中衬底-薄膜结构的变形较小^[3]。使用该方法时,一般把整个晶圆作为沉积薄膜的衬底以增大被测区域的面积,从而提高测量精度^[9]。除晶圆以外,一些研究人员还使用悬臂梁作为衬底,基于沉积薄膜前后悬臂梁的曲率变化来计算残余应力。这类方法中,衬底悬臂梁(即衬底梁)和薄膜的厚度相近,因此需要修正 Stoney 公式来保证计算精度,其过程较为繁琐。此外,Stoney 公式自身也有很多局限性^[10]。综上所述,传统的基于 Stoney 公式测量残余应力的方法,在一般情况下仅适用于较大面积薄膜的残余应力测量。如果基本实验条件发

生变化,或者被测薄膜的材料性质较为特殊,则需要根据实际情况对 Stoney 公式进行修正^[3,8]。

作为薄膜沉积方法的一种,脉冲激光沉积(Pulsed Laser Deposition, PLD)法使用紫外波段的脉冲激光快速轰击并加热靶材,在衬底上沉积薄膜。PLD 起源于二十世纪六十年代,并在二十世纪九十年代前后得到了长足的发展。PLD 制备出的薄膜具有结构致密、组分精确可控等优点,因此被广泛地应用到半导体、铁电、纳米晶体等薄膜的制备工作中^[11]。受激光加工方法所限,脉冲激光沉积一般只用于小面积样品的薄膜沉积工作。因此,传统的基于晶圆和 Stoney 公式的测试方法并不适用于 PLD 制备的薄膜,而对 Stoney 公式进行修正则会大幅提升研究的难度与复杂度。

针对上述难题,本文提出了一种适用于测量 PLD 制备的小面积薄膜的残余应力测量方法。该方法基于悬臂梁结构完成实验,解决了在样品面积有限的条件下残余应力的测量问题;对残余应力进行数值计算,解决了 Stoney 公式需要修正的问题。

本文选择 PLD 高温制备的二氧化钒(Vanadium Dioxide, VO_2)薄膜作为实验对象。作为一种新型 MEMS 机械驱动材料, VO_2 具有相变温度低、相变引发的应变大等优点^[6-7,12-14]。精确测量 VO_2 薄膜的残余应力对 VO_2 MEMS 器件的研究具有重要意义。

2 实验原理

本文提出的方法测量残余应力所用结构为初始曲率为零的悬臂梁。选择水平状态的悬臂梁作为衬底有两方面的原因:(1)悬臂梁的曲率变化易于计算和分析;(2)水平悬臂梁上沉积薄膜的厚度较为均匀,有助于提高测量结果的准确度。

图 1 为使用悬臂梁结构测量薄膜残余应力的概念图。在 PLD 设备的沉积腔室中水平放置悬臂梁,在其表面沉积一层被测薄膜,形成双层结构。此时,由于被测薄膜内部存在残余应力,该双层结构发生翘曲,测量并记录该翘曲形貌。

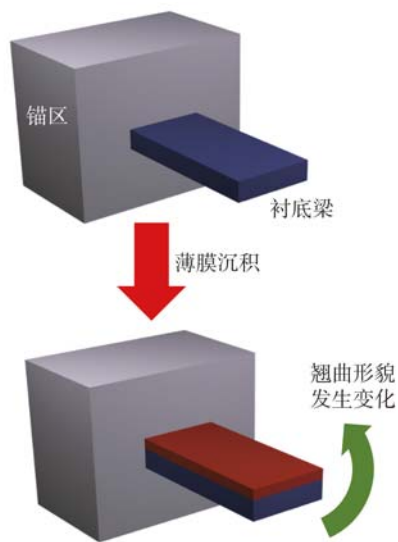


图 1 悬臂梁结构测量薄膜残余应力的概念图

Fig. 1 Schematic of residual stress measurement in thin films using cantilever structures

该实验涉及到三组参数,如图 2 所示:(1)几何参数:被测薄膜的厚度,衬底梁的几何尺寸,沉积薄膜前后悬臂梁的翘曲形貌;(2)衬底梁的材料参数:杨氏模量和泊松比等;(3)被测薄膜的材料参数,包括杨氏模量、泊松比和残余应力。上述三组参数中只有被测薄膜的残余应力是未知量。可以根据其他已知参数,使用数值计算得到被测薄膜残余应力的数值。

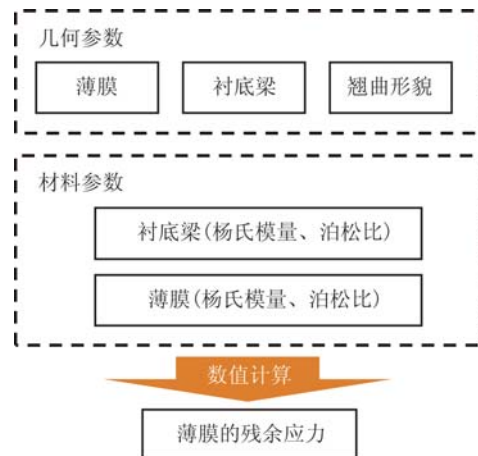


图 2 实验涉及到的参数

Fig. 2 Parameters involved in experiment

3 实验方法

实验流程如图 3 所示。



图 3 实验流程

Fig. 3 Flow chart of experiment

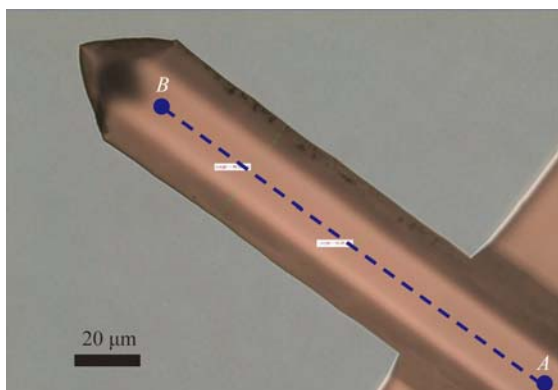
3.1 衬底梁的选择与表征

选择 NANOSENSORS 公司的 PPP-NCHR 型号原子力显微镜 (Atomic Force Microscopy, AFM) 探针作为实验的衬底梁,其主体材料为硅。AFM 探针经过一段时间的使用后,会因为尖端部分的磨损而被废弃。但是,本文提出的方法仅需要 AFM 探针的悬臂梁部分,因此本实验使用的是废弃的 AFM 探针,极大地降低了实验成本。

首先,对 AFM 探针进行表征。使用光学显微镜观察 AFM 探针形貌,并测量探针上下表面的宽度。这一步的主要目的是:(1)检验 AFM 探针的质量,挑选表面没有裂纹或破损的完好探针进行实验;(2)记录 AFM 探针的宽度,为有限元建模做准备。AFM 探针的显微镜照片如图 4(a) 所示。

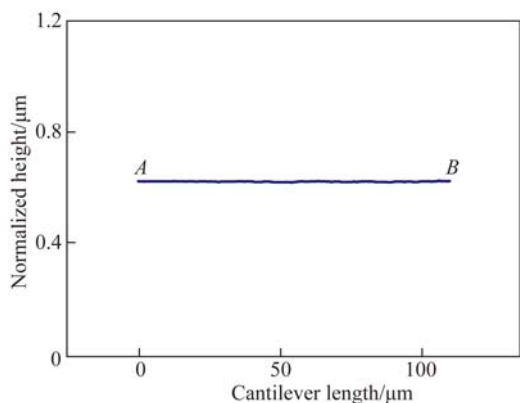
使用 ADE Phase Shift MicroXAM 光学干涉

轮廓仪对 AFM 探针的翘曲形貌进行表征, 其代表性结果如图 4(b) 所示。图 4(b) 中的数据在图 4(a) 中 A 至 B 虚线范围之内。可以看出: 此时 AFM 探针没有发生翘曲, 说明沉积实验前悬臂梁的曲率为零。



(a) AFM 探针的光学显微镜照片

(a) Image of an AFM probe under optical microscope



(b) 衬底梁的弯曲形貌

(b) Bending profile of a substrate cantilever

图 4 薄膜沉积实验前对 AFM 探针的表征

Fig. 4 Characterization of AFM probes before thin film deposition experiment

使用扫描电子显微镜 (Scanning Electron Microscopy, SEM) 对 AFM 探针进行表征, 测量 AFM 探针的厚度, 并进一步确认 AFM 探针没有破损。代表性 SEM 照片如图 5 所示。

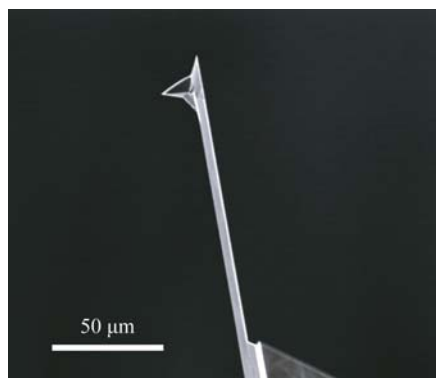


图 5 AFM 探针的 SEM 图

Fig. 5 SEM image of an AFM probe

3.2 脉冲激光沉积 VO₂ 薄膜

基于实验室自组装的 PLD 设备沉积 VO₂ 薄膜。在沉积过程中, PLD 设备的 KrF 脉冲紫外激光器产生波长为 248 nm 的脉冲激光, 其强度为 350 mJ, 频率为 5 Hz。该激光被聚焦到纯度为 99% 的 VO₂ 靶材上。衬底温度为 575 °C, 腔室内的氧气压强为 0.97 Pa。受设备样品台所限, 该 PLD 仅能在 9.8 mm × 9.8 mm 的方形样品上沉积薄膜。

为了在 PLD 设备中安置 AFM 探针, 首先使用银胶将 AFM 探针固定到方形硅片上 (如图 6 所示), 再将整个方形硅片连同 AFM 探针放到 PLD 设备的样品台上。



图 6 PLD 实验中 AFM 探针的安置方法示意图

Fig. 6 Schematic of installation method of AFM probes in PLD experiment

在 VO₂ 沉积过程中,衬底温度为 575 ℃。为了确定高温环境对 AFM 探针翘曲形貌的影响,在实验中加入了对照组,如图 7 所示。实验组的 AFM 探针被放置在沉积 VO₂ 的一侧,而对照组的 AFM 探针被放置在背面。在 PLD 的过程中,实验组和对照组的 AFM 探针都经历了升温与降温的整个过程,但是只有实验组的 AFM 探针表面沉积有一层 VO₂ 薄膜。对照组可以用来评估升降温过程对 AFM 探针翘曲形貌的影响程度。

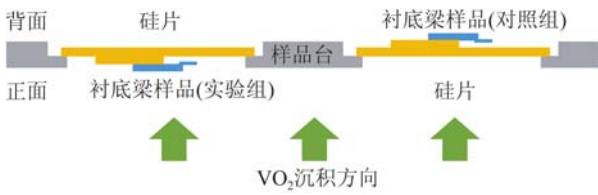
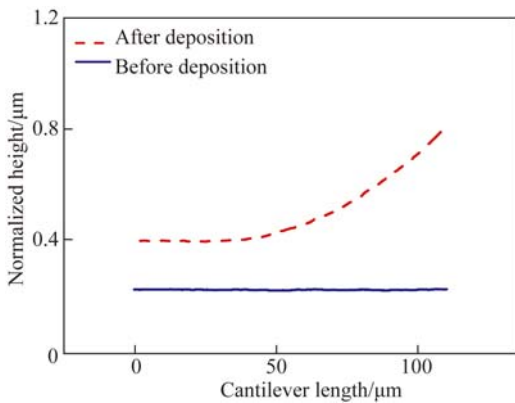


图 7 VO₂ 薄膜的沉积实验
Fig. 7 VO₂ thin film deposition experiment

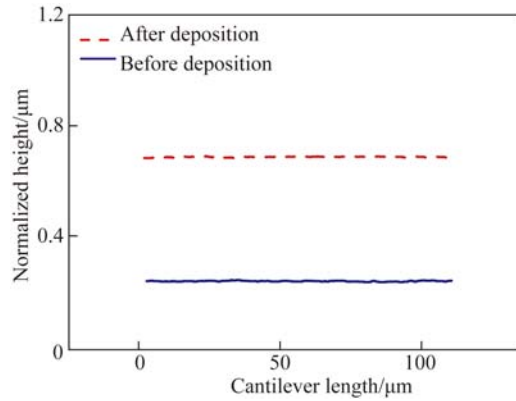
受 PLD 样品台的形状影响,在硅片上沉积的 VO₂ 薄膜面积小于硅片面积(见图 7)。因此,使用 Dektak 3030 台阶仪测量硅片上 VO₂ 薄膜在边缘处的台阶高度,以得出实验中沉积 VO₂ 薄膜的厚度。

3.3 衬底梁翘曲形貌的测量结果

在 PLD 实验后,再次使用光学干涉轮廓仪分别测量室温下实验组和对照组的 AFM 探针翘曲形貌,其代表性结果如图 8 所示。



(a)实验组
(a)Experimental group



(b)对照组
(b)Control group

图 8 薄膜沉积前后衬底梁翘曲形貌对比

Fig. 8 Comparison of bending profiles of substrate cantilevers before and after thin film deposition

从图 8 中可以看出,实验组的 AFM 探针在沉积一层 VO₂ 薄膜之后发生了翘曲,但是对照组的 AFM 探针的翘曲形貌在 PLD 实验前后几乎没有变化。这说明 PLD 的高温环境对 AFM 探针的曲率影响可以忽略不计,实验组 AFM 探针的翘曲来源于 VO₂ 薄膜内部的残余应力。因此,可以使用实验组 AFM 探针的翘曲形貌计算 VO₂ 薄膜内部的残余应力。

4 数据分析与讨论

4.1 基于数值计算的数据分析

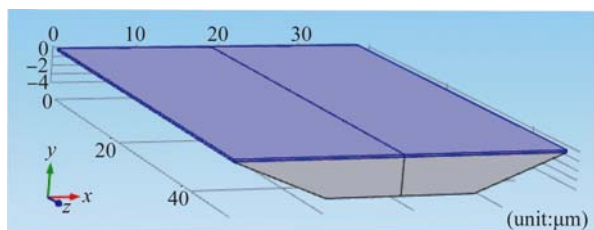
通过实验得到了 AFM 探针以及 VO₂ 薄膜的几何参数。这里采用两个实验组 AFM 探针的实验数据进行计算,测得的部分几何参数如表 1 所示。

表 1 实验测得的部分几何参数

Tab. 1 Partial geometric parameters measured in experiment

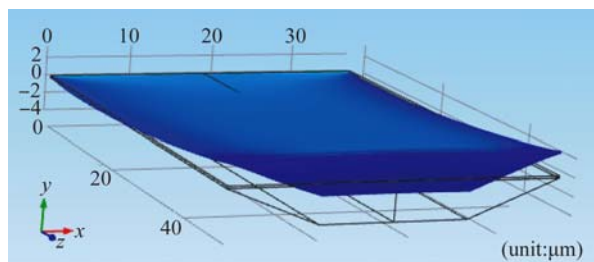
AFM 探针	上表面 宽度/μm	下表面 宽度/μm	衬底梁 厚度/μm	VO ₂ 薄膜 厚度/nm
1	36.3	16.3	4	223
2	36.8	16.4	4	

根据产品说明,所用 AFM 探针的主要组成材料为硅,表面有一层铝反射层。二者的材料参数(杨氏模量、泊松比等)参考有限元分析软件 COMSOL Multiphysics 自带的材料数据库。VO₂ 薄膜的材料参数(杨氏模量、泊松比等)取自文献[15]。使用 COMSOL Multiphysics 进行数值计算。将所有已知参数输入软件中,得到的模型如图 9(a)所示。图 9(a)中多层结构的一端被设定为固支端,以得到悬臂梁结构。



(a) 悬臂梁的有限元模型

(a) Finite element model of cantilever



(b) 残余应力引起的变形

(b) Deformation induced by residual stress

图 9 数值计算

Fig. 9 Numerical calculation

采用该模型进行数值计算以获取残余应力的方法为:调整 VO₂ 薄膜中的残余应力数值,直到悬臂梁的翘曲情况与实验结果相符,记录此时的残余应力作为数值计算的结果。向 VO₂ 薄膜中加入残余应力后悬臂梁发生变形的示意图如图 9(b)所示。图 9(b)中结构的变形程度被放大以方便阅读。

实验中悬臂梁受 VO₂ 薄膜残余应力的影响而发生翘曲的情况,以及通过数值计算得出的残余应力数值如表 2 所示。表 2 中采样长度是悬臂梁上的数据点与锚区的距离,翘曲距离是该数据点在竖直方向上因翘曲而偏离原始位置的距离。

对计算结果取平均值,可知在室温下 VO₂ 薄膜的残余应力为 -340 MPa,这一数值与文献结果在误差范围内基本吻合^[9],证明本文所述的方法能够较为准确地测量薄膜内部的残余应力。

表 2 翘曲情况与残余应力计算结果

Tab. 2 Bending profiles and calculation results of residual stresses

AFM 探针	采样长度/ μm	翘曲距离/ μm	VO ₂ 薄膜的残余应力/MPa
1	50	0.17	-330
2	50	0.18	-350

4.2 讨论

与传统的薄膜残余应力测量方法(晶圆和 Stoney 公式)相比^[3,8],本文提出的测量方法主要有两方面的优点:(1)不需要大面积薄膜样品即可完成残余应力的测量工作;(2)借助数值计算方法处理实验数据,不需要通过复杂的理论推导对 Stoney 公式进行针对性修正。本文的方法主要有两点不足:(1)实验步骤较多且实验数据量较大,实验周期较长;(2)安置和转移衬底梁(AFM 探针)的操作难度较大,实验过程中容易因操作不当而损坏实验样品。

本文所用方法的测量精度主要受以下两个因素影响:(1)PLD 薄膜厚度的均一性较差,因此在样品边缘测得的薄膜厚度与 AFM 探针上的薄膜厚度之间存在一定误差;(2)光学干涉轮廓仪测得的翘曲形貌数据为一条连续的曲线,难以准确定位悬臂梁与锚区的分界点,影响了悬臂梁“采样长度”数据的准确度。

5 结论

本文提出了一种将悬臂梁结构和数值计算相结合的、用来测量小面积 PLD 薄膜内部残余应力的方法,使用该方法对高温 PLD 制备出的 VO₂ 薄膜在室温下的残余应力进行了测量。实验结果表明:利用本文提出的方法测得 PLD 制备的 VO₂ 薄膜在室温下的残余应力为 -340 MPa,与文献数据基本相符,说明本文提出的方法切实可行。该材料属性数据可为基于 PLD 工艺的 VO₂ MEMS 器件的设计提供参考。该方法借助数值计算处理实验数据,以获得薄膜的残余应力,解决了 Stoney 公式应用范围有限且需要根据实际情况进行修正的难题。本文提出的方法还可以用于测量其他薄膜沉积方法(如:电子束蒸发法)制备的薄膜的残余应力,或者在大面积晶圆上测量不同细分区域的局部残余应力,具有适用范围广的优点。

参考文献:

- [1] 孔慧, 李传宇, 周连群, 等. 薄膜谐振 Lamb 波传感器测量液体流速矢量的方法 [J]. 光学精密工程, 2017, 25(1): 155-162.
KONG H, LI CH Y, ZHOU L Q, *et al.*. A method for fluid velocity vector measurement using thin film Lamb wave resonator [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2017, 25(1): 155-162. (in Chinese)
- [2] 赵健, 施芹, 夏国明, 等. 小型化硅微谐振式加速度计的实现与性能测试 [J]. 光学精密工程, 2016, 24(8): 1927-1933.
ZHAO J, SHI Q, XIA G M, *et al.*. Implementation and measurement of a miniaturized silicon resonant accelerometer [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2016, 24(8): 1927-1933. (in Chinese)
- [3] 虞益挺, 苑伟政, 乔大勇. 曲率测量技术在微机电系统薄膜残余应力测量中的应用 [J]. 机械工程学报, 2007, 43(3): 78-81.
YU Y T, YUAN W ZH, QIAO D Y. Application of curvature measurement technique for measuring residual stresses in MEMS thin films [J]. *Chinese Journal of Mechanical Engineering*, 2007, 43(3): 78-81. (in Chinese)
- [4] 周剑, 吴学忠, 肖定邦, 等. 柔性声表面波器件的波模式分析 [J]. 光学精密工程, 2016, 24(6): 1328-1334.
ZHOU J, WU X ZH, XIAO D B, *et al.*. Analysis on wave mode of flexible surface acoustic wave devices [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2016, 24(6): 1328-1334. (in Chinese)
- [5] WON S S, LEE J, VENUGOPAL V, *et al.*. Lead-free Mn-doped ($K_{0.5}, Na_{0.5}$) NbO_3 piezoelectric thin films for MEMS-based vibrational energy harvester applications [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(23): 232908.
- [6] LIU K, CHENG CH, CHENG ZH T, *et al.*. Giant-amplitude, high-work density microactuators with phase transition activated nanolayer bimorphs [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(12): 6302-6308.
- [7] MA H, HOU J W, WANG X W, *et al.*. Flexible, all-inorganic actuators based on vanadium dioxide and carbon nanotube bimorphs [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(1): 421-428.
- [8] KLEIN C A. How accurate are Stoney's equation and recent modifications [J]. *Journal of Applied Physics*, 2000, 88(9): 5487-5489.
- [9] VISWANATH B, KO C, RAMANATHAN S. Thermoelastic switching with controlled actuation in VO_2 thin films [J]. *Scripta Materialia*, 2011, 64(6): 490-493.
- [10] PUREZA J M, LACERDA M M, DE OLIVEIRA A L, *et al.*. Enhancing accuracy to Stoney equation [J]. *Applied Surface Science*, 2009, 255(12): 6426-6428.
- [11] LOWNDES D H, GEOHEGAN D B, PURETZKY A A, *et al.*. Synthesis of novel thin-film materials by pulsed laser deposition [J]. *Science*, 1996, 273(5277): 898-903.
- [12] TORRES D, WANG T Y, ZHANG J, *et al.*. VO_2 -based MEMS mirrors [J]. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2016, 25(4): 780-787.
- [13] TORRES D, ZHANG J, DOOLEY S, *et al.*. Modeling of MEMS mirrors actuated by phase-change mechanism [J]. *Micromachines*, 2017, 8(5): 138.
- [14] WANG T Y, TORRES D, FERNÁNDEZ F E, *et al.*. Maximizing the performance of photothermal actuators by combining smart materials with supplementary advantages [J]. *Science Advances*, 2017, 3(4): e1602697.
- [15] CABRERA R, MERCED E, SEPÚLVEDA N. Performance of electro-thermally driven VO_2 -based MEMS actuators [J]. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2014, 23(1): 243-251.

作者简介:



董恺琛(1989—),男,黑龙江哈尔滨人,博士研究生,2012年于清华大学获得学士学位,主要从事微机电系统技术的研究。E-mail: dkcl2@mails.tsinghua.edu.cn

导师简介:



尤政(1963—),男,江苏扬州人,教授,中国工程院院士,长江学者,主要研究领域为微米/纳米技术、微光机电系统集成、微纳卫星技术。E-mail: yz-dpi@mail.tsinghua.edu.cn