

文章编号: 1005-5630(2015)04-0367-04

## 共溅射制备 $W_xSi_{1-x}/Si$ 多层膜应力的实验研究

冀 斌<sup>1</sup>, 张一志<sup>1</sup>, 朱京涛<sup>1</sup>, 吴文娟<sup>2</sup>

(1. 同济大学 物理科学与工程学院, 上海 200092; 2. 上海应用技术学院 理学院 201418)

**摘要:** 采用直流磁控溅射技术制备了周期厚度为 27.5 nm 的 W/Si 多层膜, 使用实时应力测量装置对其应力特性进行了研究。为降低膜层应力, 采用 W、Si 共溅射技术制备  $W_xSi_{1-x}$  膜层替换 W 膜层, 制备出  $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜, 与 W/Si 多层膜的应力特性进行了比较研究。结果表明, W/Si 多层膜为较大的压应力, 测量值为 -476.86 MPa,  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜为较小的压应力, 测量值为 -102.84 MPa。因此采用共溅射制备  $W_xSi_{1-x}$  代替 W 可以显著改善多层膜的应力特性。

**关键词:** 应力; 多层膜; 共溅射; 磁控溅射; X 射线

**中图分类号:** O484.1 **文献标志码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1005-5630.2015.04.018

### Stress analysis of $W_xSi_{1-x}/Si$ multilayer prepared by co-deposited magnetron sputtering

Ji Bin<sup>1</sup>, ZHANG Yizhi<sup>1</sup>, ZHU Jingtao<sup>1</sup>, WU Wenjuan<sup>2</sup>

(1. School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China

2. College of sciences, Shanghai Institute of Technology, Shanghai 201418, China)

**Abstract:** W/Si multilayer film with periodic of 27.5 nm was fabricated by using DC magnetron sputtering technology. The stress property has been studied by using the real time stress measurement instrument. To reduce the stress between the layers,  $W_xSi_{1-x}$  material made by W and Si co-deposited technology was used to replace W material, and finally the  $W_xSi_{1-x}/Si$  film was fabricated. A comparative study of stress property between  $W_xSi_{1-x}/Si$  film and W/Si film has been conducted. The result indicates that W/Si periodic multilayer film shows relatively larger compressive stress. The value is -476.86 MPa.  $W_xSi_{1-x}/Si$  periodic multilayer film shows relatively smaller compressive stress. The value is -102.84 MPa. Therefore, the replacement of W material by  $W_xSi_{1-x}$  material fabricated by co-deposited technology can significantly improve the stress of the multilayer film.

**Keywords:** stress; multilayer; co-deposited; magnetron sputtering; X-ray

## 引 言

作为极紫外与 X 射线光学的关键元件, 多层膜已在等离子体诊断、生命科学<sup>[1]</sup>、空间天文观测、同步

收稿日期: 2014-12-08

基金项目: 国家自然科学基金(11305104); 大科学装置联合基金重点项目(U1432244)

作者简介: 冀 斌(1992—)男, 硕士研究生, 主要从事 X 射线薄膜光学与技术研究。E-mail: jibin6465@gmail.com

通信作者: 朱京涛(1978—)男, 教授, 主要从事 X 射线薄膜光学与技术研究。E-mail: jtzhu@tongji.edu.cn

辐射<sup>[2]</sup>等领域发挥着越来越重要的作用。多层膜 Laue 透镜(multilayer Laue lens, MLL)是一种新型的基于多层膜的一维波带片结构<sup>[3]</sup>。它利用多层膜技术,克服了传统刻蚀方法对高宽比的限制,适合应用于硬 X 射线波段,是目前国际上实现硬 X 射线纳米聚焦最有效的方法之一。W/Si 多层膜材料是 X 射线广泛运用的材料组合,其化学性质稳定,界面清晰,粗糙度小等优点。在 X 射线能段,要求多层膜的总层数几百层达到上千层。但是磁控溅射制备出的 W/Si 多层膜具有较大的压应力,采用 W 的硅化物代替 W 膜层,制备出的  $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜应力较小<sup>[4]</sup>。例如,同济大学实验室制备的 MLL 的膜层总数为 532 层,总厚度为 7.9  $\mu\text{m}$ 。膜层生长中不可避免的应力及薄膜应力的累积会引起膜层褶皱、破裂和基板变形等问题<sup>[5]</sup>,因此,膜系的应力是多层膜 Laue 透镜研制中必须解决的关键问题<sup>[6]</sup>。

薄膜应力可分为热应力和内应力。热应力主要来自于不同薄膜材料热膨胀系数的差异;内应力的性质和大小主要取决于沉积原子的生长方式,不同材料、不同工艺、不同膜层厚度都会引起内应力的很大变化。当薄膜和基板的附着力无法承受薄膜应力带来的形变,尤其当应力发生突变或在边缘处集中时,薄膜就会因压应力而弯曲、褶皱,或因张应力而破裂、脱落<sup>[3]</sup>。为了制备多层膜 Laue 透镜,本文研究了 W/Si、 $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜的应力特性,采用共溅射制备  $W_xSi_{1-x}$  膜层,通过测量镀膜过程中基板的曲率变化,利用 Stony 公式计算了多层膜的应力大小,比较了相同工艺条件下制备的 W/Si 和  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜应力特性。

## 1 实验

在薄膜应力研究中,一般只考虑宏观应力,薄膜应力测量首先是以面形测量为基础,然后再根据 Stony 公式进行计算。薄膜中应力的测量方法有多种,本文采用测量基片曲率半径的方法来计算薄膜的应力。在厚度为 0.15 mm 圆形的平面基片上镀制薄膜以后,基板会产生形变。基板所产生的形变是由薄膜内存在的应力导致的。形变后的曲面可视为球面的一部分,Stony 公式,由镀膜过程中圆形基片的曲率的变化计算出薄膜的应力大小。本文利用实时应力测量装置对镀膜过程中的圆形玻璃基板面形进行测量,得到镀膜过程中基板面形的变化情况,将其跟镀膜前基板面形进行对比,由此得到沉积前后基板形变,利用几何关系  $R \approx a^2/8h$  ( $h \ll a$ ) 得到镀膜前基板表面的曲率半径  $R_{\text{pre}}$ ,最后根据 Stony 公式就可求得应力值。

利用直流磁控溅射技术制备了 W/Si 周期多层膜,利用共溅射技术制备了  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜。镀膜后,膜层采用 X 射线掠入射反射(grazing incident X-ray reflectivity, GIXRR)测量膜层的厚度。多层膜的设计周期  $D=27.5$  nm,  $\gamma=0.5$ ,周期数  $N=10$ ,基板为直径为 30 mm 超光滑玻璃,厚度为 0.15 mm。制备时镀膜设备本底真空为  $2 \times 10^{-4}$  Pa,工作气体 Ar(纯度为 99.99%),工作气压为 0.3 Pa。

镀膜前,利用台阶仪(Veeco 公司, Dektak 6M)对玻璃基板的面形进行测量。测量时探针沿着玻璃基板表面的两个相互垂直的方向进行扫描,并标记 X、Y 方向。图 1 给出了两块基板镀膜前在 X 方向的测试结果,其中基板 1 准备镀制 W/Si 多层膜,基板 2 准备镀制  $W_xSi_{1-x}$  多层膜。从图 1 中看出,由于基板太薄,基板略有弯曲。利用几何关系  $R \approx a^2/8h$  ( $h \ll a$ ) 可得到镀膜前基板表面的曲率半径  $R_{\text{pre}}$ ,其中  $a$  为台阶仪横向扫描的长度; $h$  为扫描的最大形变高度。基板 1 与基板 2 表面曲率分别为  $0.03 \text{ m}^{-1}$  和  $0.025 \text{ m}^{-1}$ 。

用来制备样品的镀膜机有 ABC 三个靶,其中,AC 均为 Si 靶,B 为 W 靶。镀制 W/Si 周期多层膜时利用 AB 两靶,W 靶的溅射功率为 30 W,Si 靶的溅射功率为 40 W。镀制  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜时利用 ABC 三靶,通过调整 BC 两靶之间的倾斜角度实现 W、Si 的共溅射,共溅射 W 靶和 Si 靶的溅射功率分别为 30 W 和 20 W。A 靶 Si 的溅射功率保持 40 W 不变。在镀膜过程中,每镀完一层薄膜,样品回到测量点,实时应力测量装置测量样品基板曲率。

图 2 是两样品在膜层镀制过程中基板曲率实时变化情况。可以看出,在薄膜镀制的过程中,随着镀膜的进行, $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜与 W/Si 多层膜玻璃基板的曲率不断增大,并且在整个镀膜过程中, $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜的曲率变化幅度明显小于 W/Si 多层膜。

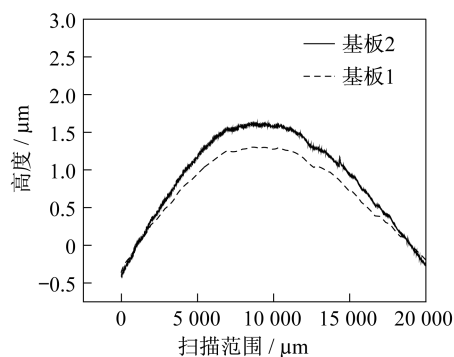


图1 镀膜前沿 X 方向测量基板的曲率  
Fig. 1 Surface profile measurement along X direction of the substrate before deposition

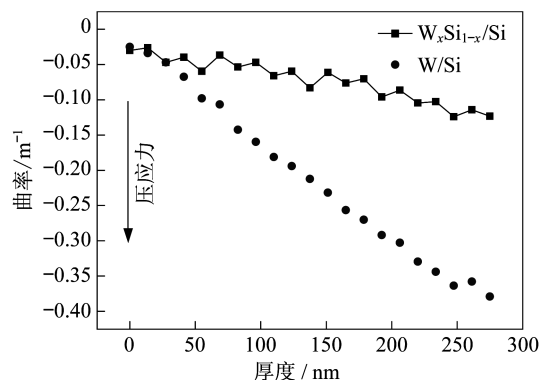


图2 溅射过程中基板曲率的变化  
Fig. 2 Surface profile of the substrate during the sputtering

## 2 薄膜应力计算分析

根据镀膜前后基板表面的曲率半径值,利用 Stony 公式即可以求得薄膜应力<sup>[7]</sup>。假设基板是具有弹性模量  $E_s$  和泊松比  $V_s$  的各向同性的弹性固体,根据 Stony 公式,可计算出薄膜整体的应力

$$\sigma_f = \frac{1}{6} \left( \frac{1}{R_{\text{post}}} - \frac{1}{R_{\text{pre}}} \right) \left( \frac{E_s}{1 - V_s} \right) \frac{t_s^2}{t_f} \quad (1)$$

式中:  $t_s$  为基板厚度;  $t_f$  为薄膜厚度。

取超光滑基板的弹性模量  $E_s = 80$  GPa,泊松比  $V_s = 0.17$ <sup>[8]</sup>。计算结果表明, W/Si 周期多层膜的应力值为  $-476.86$  MPa,  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜的应力值为  $-102.84$  MPa。W/Si 和  $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜都表现出压应力,这是因为溅射成膜条件下能量较高的沉积原子轰击薄膜表面形成致密的膜层结构,薄膜生长过程中产生压应力,这与文献[9-10]中结论一致。在两种膜系中,  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜的应力远小于 W/Si 周期多层膜的应力。W/Si 多层膜应力较高的原因可能与界面材料相互扩散形成界面层有关,而对于  $W_xSi_{1-x}/Si$  多层膜来说,  $W_xSi_{1-x}$  是 Si 的化合物,不易与 Si 发生反应<sup>[11]</sup>,因此有着较小的应力。

## 3 结论

通过薄膜实时应力测量实验,对直流磁控溅射条件下制备 W/Si、 $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜的应力特性进行了研究。应力实验结果显示, W/Si、 $W_xSi_{1-x}/Si$  都表现为压应力,但是  $W_xSi_{1-x}/Si$  周期多层膜的应力明显小于 W/Si 周期多层膜的应力,表现出更稳定的应力特性,因此引入共溅射  $W_xSi_{1-x}$  层代替 W 层可以改善周期多层膜的应力。对于研制大膜层对数的 MLL 有一定的帮助。

## 参考文献:

- [1] 岳帅鹏,朱京涛,涂昱淳,等. 氮气反应溅射制备 Co/Sb 多层膜研究[J]. 光学仪器, 2014, 36(4): 359-363.
- [2] 朱京涛,王蓓,徐垚,等. 类镍钼软 X 射线激光用多层膜反射镜的研制[J]. 光学仪器, 2006, 28(4): 146-149.
- [3] MASER J, STEPHENSON G B, VOGT S, et al. Multilayer Laue lenses as high-resolution X-ray optics [J]. SPIE, 2004, 5539: 185-194.
- [4] HUANG Q S, LI H C, SONG Z Q, et al. Hard X-ray one dimensional nano-focusing at the SSRF using a  $W_xSi_{1-x}/Si$  multilayer Laue lens [J]. Chinese Physics C, 2013, 37(2): 028002.
- [5] LIU C, CONLEY R, MACRANDER A T, et al. Depth-graded multilayer for application in transmission geometry as linear zone plates [J]. Journal of Applied Physics, 2005, 98(11): 113519.
- [6] PLATONOV Y, BROADWAY D, DEGROOT B, et al. X-ray reflectivity and mechanical stress in W/Si multilayer deposited on thin substrates of glass, epoxy replicated aluminum foil, and Si wafer [J]. SPIE, 1997, 3113: 469-475.
- [7] FREUND L B, SURESH S. Thin film materials-stress, defect formation and surface evolution [M]. London: Cambridge University

Press, 2003.

- [ 8 ] SHACKLFORD J F, ALEXANDER W. CRC materials science and engineering handbook [M]. Boca Raton: CRC Press, 1994.
- [ 9 ] DURAND N, BADAWI K F, GOUDEAU PH. Influence of microstructure on residual stress in tungsten thin films analyzed by X-ray diffraction [J]. Thin Solid Films, 1996, 275(1/2): 168-171.
- [10] 张慧晶, 张众, 朱京涛, 等. 高反射率 Mo/B<sub>4</sub>C 多层膜设计及制备[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(1): 67-70.
- [11] FEDORENKO A I, KONDRATENKO V V, PALATNIK L S, et al. Space test of Mo-Si, MoSi<sub>2</sub>-Si, W-Si and WSi<sub>2</sub>-Si X-ray multilayer mirrors on Russian orbital station "Mir"[J]. SPIE, 1995, 2453: 11-14.

(编辑:程爱婕)

=====

(上接第 366 页)

近年来,世界上一些经济发达国家围绕 LED 的研制展开了技术竞赛,如日本“21 世纪光计划”,美国“下一代照明计划”,欧盟“彩虹计划”。我国目前 LED 产品还属于中、低端的产品,通过本文介绍,如果各大医院能够把现有的荧光显微镜都进行这样的改制,不但能节省大量的外汇,而且也会推动 LED 工业的发展,为振兴民族工业发挥更大的作用。

### 参考文献:

- [ 1 ] 虞启琰. 医用光学仪器[M]. 天津:天津科学出版社, 1988: 67-98.
- [ 2 ] SPRING K R. Focus and alignment of mercury and xenon arc lamp[EB/OL]. [2005-6-30]. <http://www.microscopyu.com/tutorials/java/arclamp>.
- [ 3 ] 侯珏, 刘陈. LED 在医学中的应用及展望. 光学仪器 2010, 32(1): 90-94.
- [ 4 ] LEICA MICROSYSTEMS. Fluorescence microscopy in a new light with modern LED illumination[EB/OL]. [2008-07-01]. <http://www.leica-microsystems.com>.

(编辑:刘铁英)