

13.8 薄膜應力與熱膨脹係數

江政忠/國立中央大學光電科學研究所博士、明新科技大學光電系統
工程系助理教授

關鍵字：熱應力 (thermal stress)、內稟應力 (intrinsic stress)、內應力 (internal stress)、熱膨脹係數 (thermal expansion coefficient)、應變 (strain)、彈性模量 (elastic modulus)、樑彎曲法 (bending-beam methods)、圓片法 (disk methods)、雷射光槓桿法 (laser levered method)、干涉相移法 (phase shifting interferometry method)

13.8.1 前言

薄膜應力一般是由外應力 (external stress)、熱應力 (thermal stress) 和內稟應力⁽¹⁾ (intrinsic stress) 三種分量構成的⁽²⁾。外應力，顧名思義，是由外力作用引起的。熱應力則是因為薄膜和基板的熱膨脹係數 (thermal expansion coefficient) 不同而引起的，一般發生在製鍍薄膜時基板加熱，後冷卻至室溫取出而產生的。內稟應力則是由於薄膜的成長模式和微結構的相互作用與基板有異而產生的。

薄膜應力屬於薄膜力學性質的一種，可分為伸張(tensile)應力和壓縮(compressive)應力，見圖一所示，伸張應力會使基板形成凹表面，而壓縮應力會使基板形成凸表面，由於應力會造成薄膜元件彎曲，將增加光學元件膠合組裝的困難度，且當應力過大時，會造成薄膜和基板界面間的剝落或形成過多的空洞和裂縫，限制製鍍的最大膜厚度、不利於膜層堆疊結構以及降低光學與膜質預期成效，而薄膜熱膨脹係數由於與基板熱膨脹係數不同，將影響薄膜應力大小與環境溫度穩定性，因此在薄膜製鍍工業裏，薄膜應力與熱膨脹係數是膜層設計與製程考量的重要因素。

13.8.2 原理

由於受檢測條件的限制，很難求得任意斷面上的應力，實際上僅考慮垂直基板表面的斷面的應力，有時可以推測出應力在膜厚上的分佈，但是一般忽略其不均勻性，僅考慮平均值。假設薄膜應力為各向同性(isotropic)，可以藉著薄膜蒸鍍前和蒸鍍後測量基板彎曲量(相對高度)的差值或基板的曲率半徑，代入下列公式計算膜應力⁽³⁾。

$$\sigma = \frac{1}{6R} \frac{E_s d_s^2}{(1-\nu_s) d_f} = \frac{E_s \cdot d_s^2 \cdot \Delta\delta}{3r^2 (1-\nu_s) d_f} \text{-----}(1)$$

其中 σ 為膜應力， $\Delta\delta$ 為蒸鍍前後由基板中心點至半徑 r 處相對高度的差值， r 為基板上量測位置的半徑值， R 為鍍膜後基板的曲率半徑且假設鍍膜前基板形狀是平坦無彎曲， d_s 為基板厚度， d_f 為膜厚而 E_s 和 ν_s 分別為基板楊氏模量(Young's modulus)和帕松比(Poisson's ratio)，符號定義： σ 為正值表示伸張應力， σ 為負值表壓縮應力，換言之，基板彎曲量往下彎曲為伸張應力而往上彎曲為壓縮應力。底下為(1)式的推導。

在無外應力的作用下，薄膜應力的產生基本上是薄膜和基板的材料不同且有相互作用導致的，可想像成在薄膜和基板的界面存在著作用力，如圖二(a)所示，且因達到靜止不動的平衡狀態，總作用力和總彎曲力矩必須等於零。從圖二(a)中，作用力 F_f 是等效於基板給予薄膜的作用力，且作用在薄膜的橫截面中心位置上，同理，作用力 F_s 是等效於薄膜給予基板的作用力，且作用在基板的橫截面中心位置上，由於總作用力為零，因此 $F_f = F_s$ 。另外總彎曲力矩必須為零，因此存在著薄膜彎曲力矩 M_f 和基板彎曲力矩 M_s ，導致基板和薄膜形成彎曲形狀，且 M_f 和 M_s 等於由作用力 F_f 和 F_s 產生的力矩，如下表示。

$$\left(\frac{d_f + d_s}{2} \right) F_f = M_f + M_s \text{-----}(2)$$

d_f 和 d_s 分別是薄膜和基板的厚度。現考慮受彎曲力矩 M 產生彎

曲形狀的一個獨立樑(beam) (例如薄膜或基板)，見圖二(b)，樑中央彎曲的曲率半徑為 R ，樑的厚度為 d ，樑寬度為 W ，樑長度相對於曲率半徑所對應的角度為 θ ，假設樑中央的長度未變，上表面受壓縮應力 σ_m 而壓縮 $\frac{d}{2}\theta$ ，下表面受伸張應力 σ_m 而伸長 $\frac{d}{2}\theta$ ，因此 $\sigma_m = \frac{Ed}{2R}$ ，且樑所受的應力大小與從樑中央算起的縱向距離成正比，彎曲力矩 M 可等於下式

$$M = 2 \int_0^{\frac{d}{2}} \sigma_m W \frac{y}{d/2} y dy = \frac{Ed^3 W}{12R} \quad \text{-----}(3)$$

將(3)式結果代入(2)式，一般由於基板的厚度均遠大於薄膜的厚度，且使用 $\frac{E_s}{1-\nu_s}$ 取代 E_s ，薄膜應力 σ 可得到一個良好的逼近表示式

$$\sigma = \frac{F_f}{d_f W} = \frac{1}{6R(1-\nu_s)} \frac{E_s d_s^2}{d_f} \quad \text{-----}(4)$$

由於曲率半徑和彎曲量（相對高度）的差值具有 $R \approx \frac{r^2}{2\Delta\delta}$ （因為 R 遠大於 r ），代入(4)式可得薄膜應力由(1)式來表示。

熱膨脹係數的定義是當物體溫度上升 1°C 時，其長度或體積的相對變化。因此當物體溫度從 T_1 變至 T_2 時，線性熱膨脹係數 α 定義為 $\alpha = \frac{\Delta\ell}{\ell(T_2 - T_1)}$ ， ℓ 為物體的長度， $\Delta\ell$ 為物體溫度從 T_1 變至 T_2 時物體長度的變化量。現考慮薄膜沉積於基板上，設 T_1 為薄膜的沉積溫度， T_2 為完成薄膜沉積後，薄膜從真空腔體取出後的環境溫度， α_f 與 α_s 分別為薄膜與基板的熱膨脹係數， E_f 與 E_s 分別為薄膜與基板的楊氏模量， ν_f 與 ν_s 分別為薄膜與基板的泊松比， t_f 與 t_s 分別為薄膜與基板的厚度， F_f 與 F_s 分別為薄膜與基板所承受的等效作用力， w 為基板的寬度， ε_f 與 ε_s 分別為沉積溫度 T_1 降至環境溫度 T_2 後，薄膜與基板的應變(strain)量。所以

$$\varepsilon_f = \alpha_f(T_2 - T_1) + \frac{F_f(1 - \nu_f)}{t_f w E_f} \text{-----}(5)$$

$$\varepsilon_s = \alpha_s(T_2 - T_1) - \frac{F_s(1 - \nu_s)}{t_s w E_s} \text{-----}(6)$$

由於受到邊界條件的限制，薄膜與基板的應變量會相等，所以

$$\varepsilon_f = \varepsilon_s \text{-----}(7)$$

將(5)與(6)式代入(7)式，且 $\frac{1 - \nu_s}{t_s E_s} \ll \frac{1 - \nu_f}{t_f E_f}$ ，則

$$F_f = \frac{(\alpha_s - \alpha_f)t_f w E_f(T_2 - T_1)}{(1 - \nu_f)} \text{-----}(8)$$

將(8)式薄膜所承受的等效作用力 F_f 除以薄膜截面積，可得薄膜內的熱應力 σ_T

$$\sigma_T = \frac{F_f}{t_f w} = (\alpha_s - \alpha_f) \frac{E_f}{(1 - \nu_f)} (T_2 - T_1) \text{-----}(9)$$

$\frac{E_f}{(1 - \nu_f)}$ 稱為薄膜的彈性模量 (elastic modulus) ⁽⁴⁾。如薄膜無外

應力的作用，則薄膜應力 σ 是由內稟應力 σ_i 與熱應力 σ_T 組成，將(9)式代入可得

$$\sigma = \sigma_i + \sigma_T = \sigma_i + (\alpha_s - \alpha_f) \frac{E_f}{(1 - \nu_f)} (T_2 - T_1) \text{-----}(10)$$

此薄膜應力 σ 稱為內應力 (internal or residual stress)，一般在無外應力的情況下，儀器設備量測的薄膜應力均為內應力 σ 。

13.8.3 量測方法

目前量測薄膜內應力的方法有很多種，不過大致上可以分成兩大類，第一類為量測基板的彎曲量，由於薄膜應力將使基板彎曲，如

能在薄膜附著基板後，量測基板彎曲的差異程度，就可求出薄膜應力大小，且並不需要知道薄膜的彈性模量，使用上相當方便。第二類為利用 X 光繞射技術量測薄膜的彈性應變 (elastic strain) 與內應力，如薄膜有結晶態，在內應力的作用下，晶格會產生變化，因此測量晶格的變化就能計算內應力大小⁽⁵⁾。由於 X 光繞射技術與應用已撰寫在 13.7 節「結晶性與應力」中，本節就不再陳述，本節將詳加討論第一類的薄膜應力量測方法。

在薄膜應力的量測儀器中如能裝設加熱設備於待測樣品製具上，可對待測樣品加熱昇溫，假設在加熱過程中薄膜的內稟應力不變，則量測的應力值變化 $\Delta\sigma$ 為薄膜的熱應力變化，設加熱的溫度差為 ΔT ，在加熱過程中薄膜的熱膨脹係數與彈性模量保持定值，從(10)式可得

$$\frac{\Delta\sigma}{\Delta T} = (\alpha_s - \alpha_f) \frac{E_f}{(1 - \nu_f)} \text{-----(11)}$$

雖然從儀器量測可得 $\Delta\sigma/\Delta T$ 值，但由於薄膜的熱膨脹係數與彈性模量為未知，因此無法從一個(11)式獲得薄膜的熱膨脹係數與彈性模量，但如能利用兩種已知熱膨脹係數的基板進行量測，且以相同製程條件製鍍薄膜於此兩種基板上，可產生兩組線性方程式，聯立兩組方程式進行線性擬合，就可解兩個未知量，獲得薄膜的熱膨脹係數與彈性模量，也可獲得薄膜的熱應力和內稟應力。

通常在量測薄膜的應力與熱膨脹係數上，待測樣品的形狀有兩種，一種為長條形，稱為樑彎曲法 (bending-beam methods)，另一種為圓形，稱為圓片法 (disk methods)，本文將詳細描述此兩法，而在精密度高與操作便利方面，來量測基板彎曲量的技術，本文將敘述雷射光槓桿法 (laser levered method) 與干涉相移法 (phase shifting interferometry method)。

13.8.3.1 樑彎曲法

在樑彎曲法中，基板的形狀是長條形，一端固定，當薄膜附著後測量另外一端偏移的量，或兩端固定，量測中間位置的偏移量，基板的長度一般是十倍或大於十倍的寬度，也要求基板的彈性好，厚度均勻，常用的基板是雲母片和玻璃片。有很多檢測方法可以量測此偏移量，圖三(a)為利用顯微鏡測量基板自由端的偏移量⁽²⁾，(b)為利用干涉法求得基板中間位置的偏移量⁽⁶⁾，此法的靈敏度取決於能夠量測最小偏移量的檢測方法所決定。將量測得到的偏移量 $\Delta\delta$ 與偏移量量測位置的長度值 r 代入(1)式，並輸入膜厚 d_f 、基板厚度 d_s 、基板楊氏模量 E_s 和帕松比 ν_s ，就可計算獲得此薄膜的應力。

13.8.3.2 圓片法

在圓片法中，是以圓形基板中心位置的高度，在鍍膜前後的改變量來計算薄膜附著後基板的偏移量與薄膜應力。圖四為圓片法的實驗裝置示意圖⁽²⁾，為一菲佐（Fizeau）干涉儀，將基板放在光學標準平面石英玻璃上，算出干涉條紋（牛頓環）的變化量來獲得鍍膜前後圓形基板中心位置的高度差。在此法中，基板的材質大都為玻璃、石英、矽晶片，基板平整度(flatness)的需求較高，且基板的厚度不能太厚或膜厚度不能太薄，靈敏度是受到基板厚度和膜厚度所限制。將量測得到的偏移量 $\Delta\delta$ 與偏移量量測位置的半徑值 r 代入(1)式，或使用 $R \approx \frac{r^2}{2\Delta\delta}$ 關係式求出曲率半徑 R 代入(1)式，並輸入膜厚 d_f 、基板厚度 d_s 、基板楊氏模量 E_s 和帕松比 ν_s ，就可計算獲得此薄膜的應力。

13.8.3.3 雷射光槓桿法

雷射光槓桿技術是樑彎曲法的改良，利用雷射光入射到基板上，再反射到屏幕上，不同基板位置會在屏幕上有不同的光點，可計算基板的曲率半徑，因此可獲得薄膜附著後基板的偏移量與薄膜應力。圖五為雷射光槓桿反射技術的實驗裝置示意圖⁽⁷⁾，將矽基板置於可加熱的平移台上，利用單一雷射光束入射到樣品上，再從樣品反射，經稜鏡與面鏡反射之後，投射在屏幕上，當雷射光束行經的路徑長度與待測樣品的平移量已知下，測得雷射光點的位移量，即可得知基板的曲率半徑，所以在鍍膜前後與不同的環境溫度下量測，可獲得薄膜應力與熱膨脹係數。為了改善平移量的準確性，可使用旋轉面鏡方式來移動雷射光點入射到基板的不同位置，也可使用雙平行光束入射到樣品上，來取代單一雷射光束與平移台^(8,9)。

13.8.3.4 干涉相移法

干涉相移技術是圓片法的改良，使用光的干涉原理和相移(phase shifting)技術，在鍍膜前後與不同量測溫度下獲得基板的輪廓圖與彎曲量，為一快速簡單的量測方法，且使用數位相移技術分析干涉圖形，計算干涉相位大小，可準確地提供基板的彎曲量、薄膜應力與熱膨脹係數⁽¹⁰⁻¹⁸⁾。圖六為干涉相移技術的實驗裝置示意圖，建立一套相移式 Twyman-Green 干涉儀，再將溫控加熱設備安裝於此干涉儀上，由一氬氖雷射經一顯微物鏡與針孔所構成的空間濾波器形成一點光源，再經準直透鏡產生一平面波前，藉分光鏡將平面波前振幅分割為反射波前和透射波前，然後反射光和透射光經參考面與待測面(基板)反射之後，兩反射光再經分光鏡重新合併成單一光束成像於毛玻璃屏幕上，利用 CCD 攝影機將干涉圖影像顯示在監視器上，溫控加熱設備安裝於接近待測基板的位置，使得待測基板面的溫度能夠調整至希望的量測溫度上，可以量測在某溫度上鍍膜前和鍍膜後基板的輪廓圖與彎曲量，相移方式的基本原理是遵循 Hariharan 相位還原法⁽¹⁹⁾，於干涉儀的參考面處安裝一電腦控制的壓電陶瓷元件(PZT)，以

等位移量八分之一波長連續移動參考面至五個位置，就可獲得五張相移干涉圖(間隔 $\pi/2$ 相位)，而每一位置的干涉圖強度都可由影像處理卡予以數位化，再將強度代入 Hariharan 相位還原公式計算干涉條紋的相位，求出的相位函數則可代表待測樣品的輪廓圖與彎曲量，緊接著在某溫度上將鍍膜前和鍍膜後基板相位圖相減，得到的波數代表基板偏移量，因此可求出薄膜應力與熱膨脹係數。由於薄膜應力的作用，鍍在基板上的薄膜會使基板彎曲，基板厚度與薄膜厚度的比值如太大則彎曲的程度太小，較不容易測出，所以基板厚度與薄膜厚度的比值越小越好，但基板厚度如太薄，對於基板希望擁有較佳平坦度而言，研磨的困難性就相對提高很多，因此基板厚度必須符合量測和研磨的要求。

圖七(a)、(b)為蒸鍍氧化鋁薄膜前基板和參考面之間的干涉圖，分別是相位移動 0 度和 180 度，基板的厚度為 2mm，材質為 BK7，直徑為 25.4mm，一面拋光，另一面打毛，圖七(c)、(d)則分別是相位移動 0 度和 180 度，蒸鍍氧化鋁薄膜後基板和參考面之間的干涉圖，薄膜厚度為 $1.66\mu\text{m}$ ，製鍍溫度為 275 度。在量測過程中，判斷蒸鍍前基板的表面形狀為凹表面，蒸鍍後基板的表面形狀也為凹表面，只是比蒸鍍前基板更凹的情況，可判斷此氧化鋁薄膜的應力為伸張應力。圖八為圖七干涉圖的相位圖，是干涉圖經過 Hariharan 相位還原法和 Zernike 多項式擬合後，將傾斜量扣除後的結果，從此圖可精確得知蒸鍍前後基板的表面形狀與偏移量。取離基板中心 10mm 的半徑處，計算相對於基板中心位置的平均偏移量為 $0.413\mu\text{m}$ ，BK7 的楊氏模量為 $8.1 \times 10^{11} \text{ dyne/cm}^2$ ，帕松比為 0.208，代入(1)式獲得氧化鋁薄膜的平均應力為 0.339GPa。

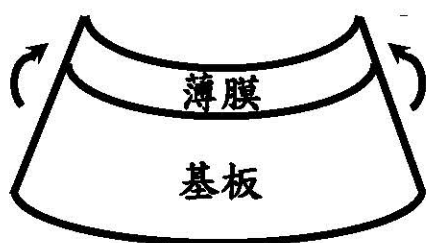
圖九為離子源濺鍍五氧化二鉬薄膜的應力與量測溫度 25 °C~70 °C 之線性關係圖，薄膜厚度為 $0.299\mu\text{m}$ ，當量測溫度升高後，干涉條紋產生變化，利用相移干涉術擷取五張干涉圖，干涉圖經數位化處理，再利用相位還原法產生相位圖，此相位圖代表待測薄膜樣品在該

溫度下加熱後的表面形狀，與加熱前基板的表面形狀比較，可得因熱膨脹所導致之基板偏移量與薄膜內應力。使用 BK-7 和 PYREX 兩種不同熱膨脹係數的玻璃材質為基板，BK-7 玻璃的熱膨脹係數為 $7.4 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ，PYREX 玻璃的熱膨脹係數為 $3.25 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ，產生兩組線性方程式，利用(11)式的關係，使用最小平方法進行薄膜熱膨脹係數與彈性模量線性擬合，求得五氧化二鉬薄膜的熱膨脹係數為 $2.42 \times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ，內稟應力為 -0.403 GPa ，彈性模量為 1549.4 GPa 。

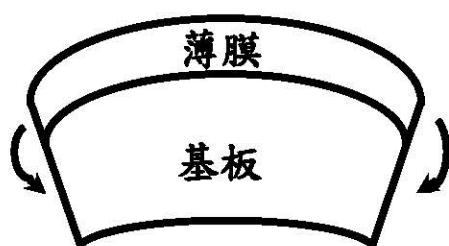
13.8.4 參考文獻

1. 國立編譯館，物理學名詞，2nd ed.，臺灣商務印書館，230 (1990).
2. D. S. Campbell, Handbook of Thin Film Technology, 1st ed., New York : McGRAW-HILL, 12-22 (1970).
3. M. Ohring, The Materials Science of Thin Films, 1st ed., San Diego : Academic Press, 420 (1992).
4. D.S. Williams, J. Appl. Phys., **57**, 2340 (1985).
5. 許樹恩，吳泰伯，X光繞射原理與材料結構分析，中國材料科學學會，390 (1996).
6. A. E. Ennos, Appl. Opt. **5**, 51 (1966).
7. A.K. Sinha, H.J. Levinstein, and T.E. Smith, J. Appl. Phys., **49**, 2423 (1978).
8. E. Kobeda and E.A. Irene, J. Vac. Sci. Technol., **B4**, 720 (1986).
9. T. Aoki, Y. Nishikawa, and S. Kato, Jpn. J. Appl. Phys., **28**, 299 (1989).
10. 江政忠，李正中，田春林，中華民國專利，111817 (2000).
11. 江政忠，李正中，田春林，科儀新知，**21** (5), 65 (2000).
12. C.L. Tien, C.C. Lee, and C.C. Jaing, J. Mod. Optics, **47**, 839 (2000).

13. 江政忠, 李正中, 田春林, 何英哲, 中華民國專利, 119783 (2000).
14. 江政忠, 李正中, 田春林, 何英哲, 美國專利, US 6466308 B1 (2000).
15. C.L. Tien, C.C. Jaing, C.C. Lee, and K.P. Chuang, J. Mod. Optics, **47**, 1681 (2000).
16. C.C. Jaing, C.C. Lee, J.C. Hsu, and C.L. Tien, Appl. Surf. Sci., **170**, 654 (2001).
17. C.C. Lee, H.C. Chen, and C.C. Jaing, Appl. Opt., **44**, 2996 (2005).
18. C.C. Lee, H.C. Chen, and C.C. Jaing, Appl. Opt., **45**, 3091 (2006).
19. P. Hariharan, B.F. Oreb, and T. Eiju, Appl. Opt., **26**, 2504 (1987).



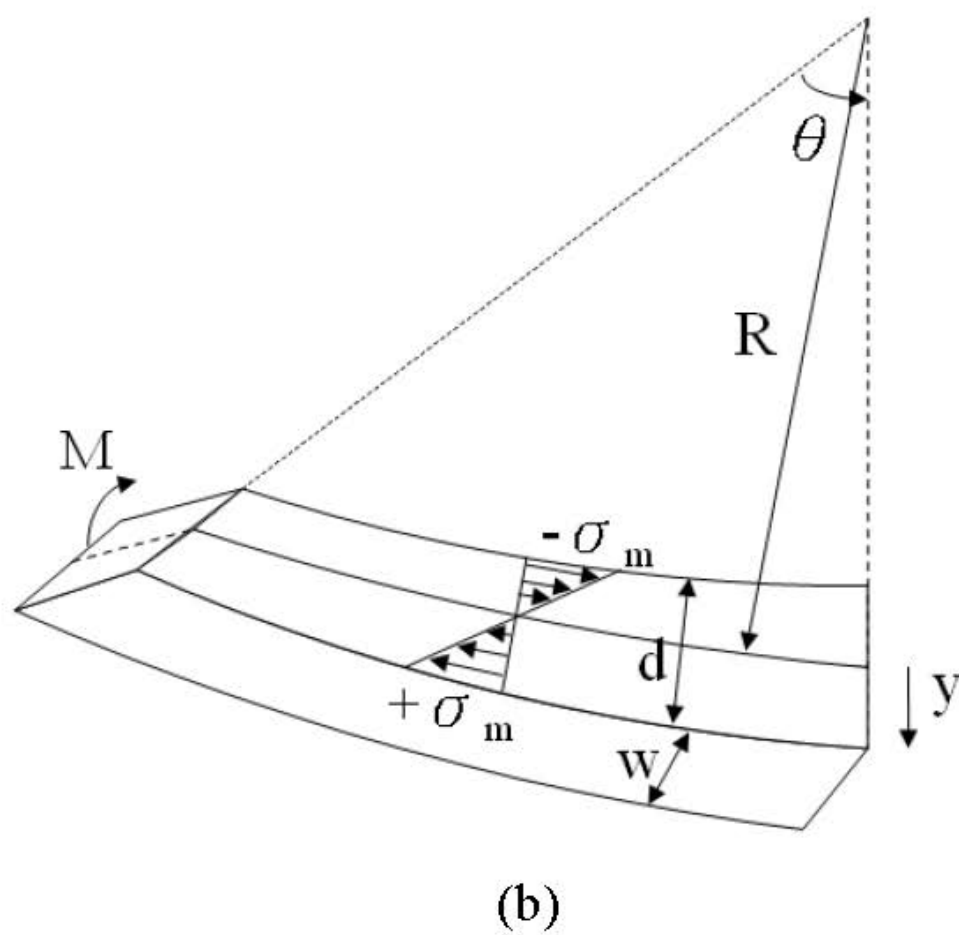
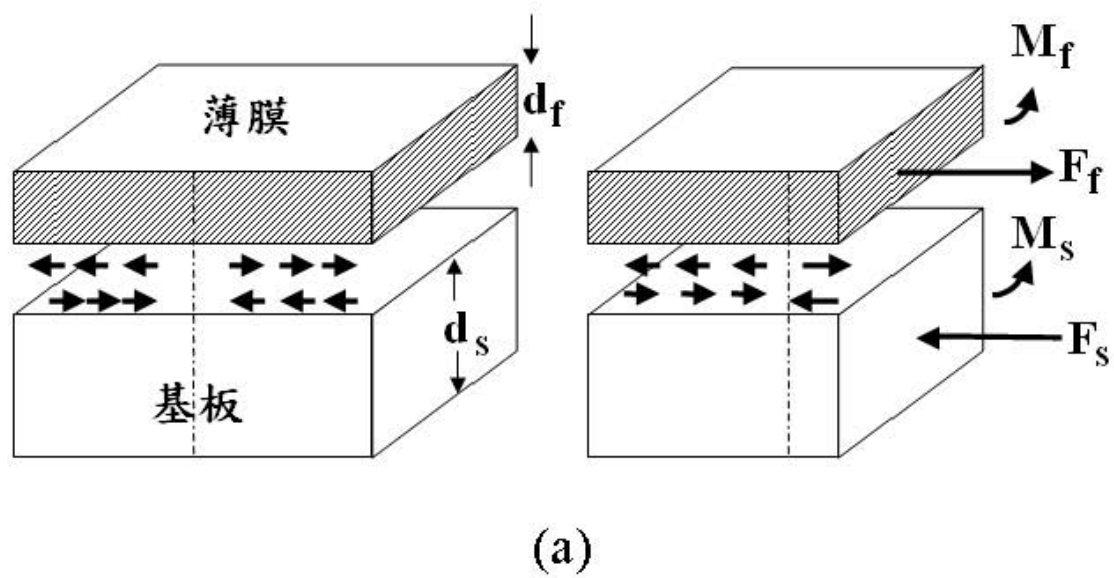
(a)



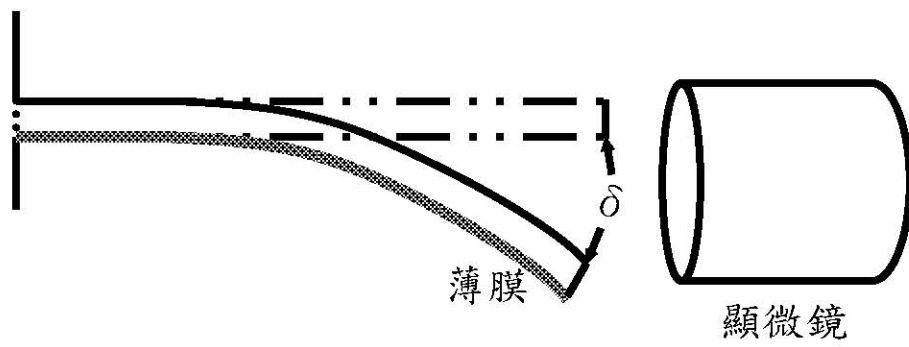
(b)

圖一 (a) 因伸張應力形成凹的膜表面。

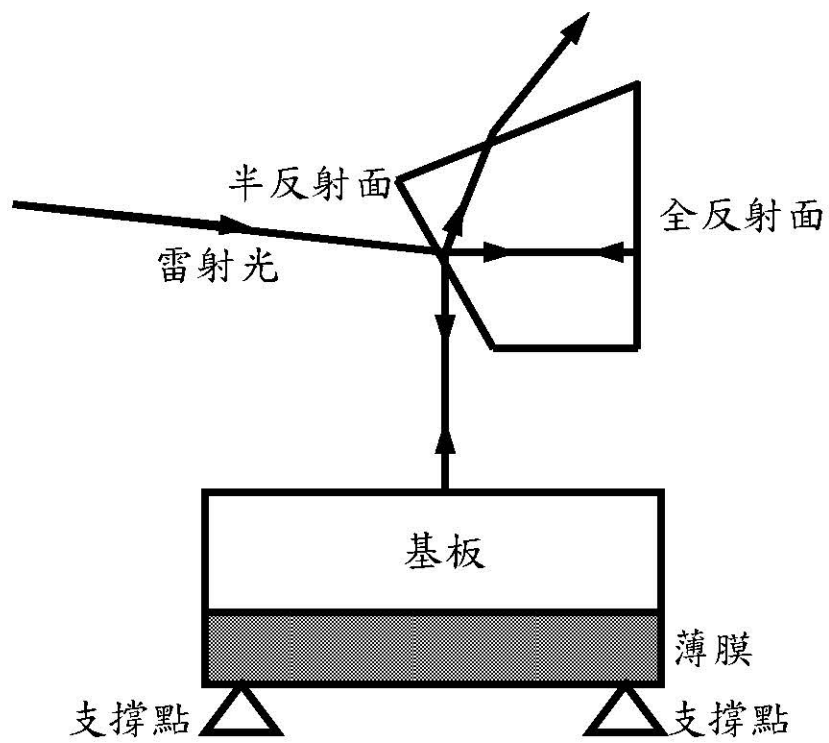
(b) 因壓縮應力形成凸的膜表面。



圖二 薄膜應力分析示意圖。



(a)

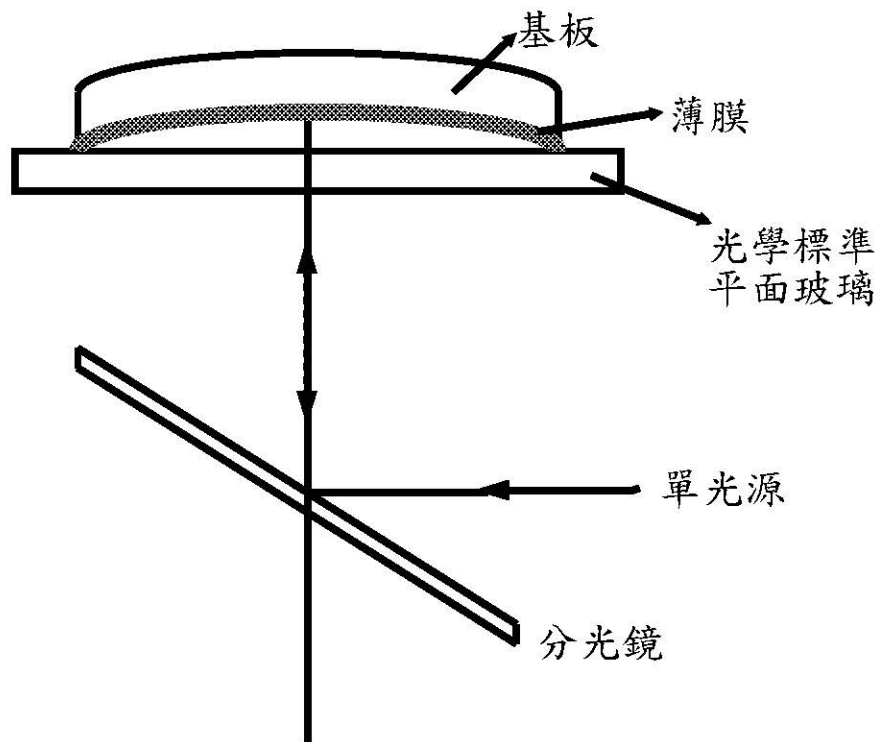


(b)

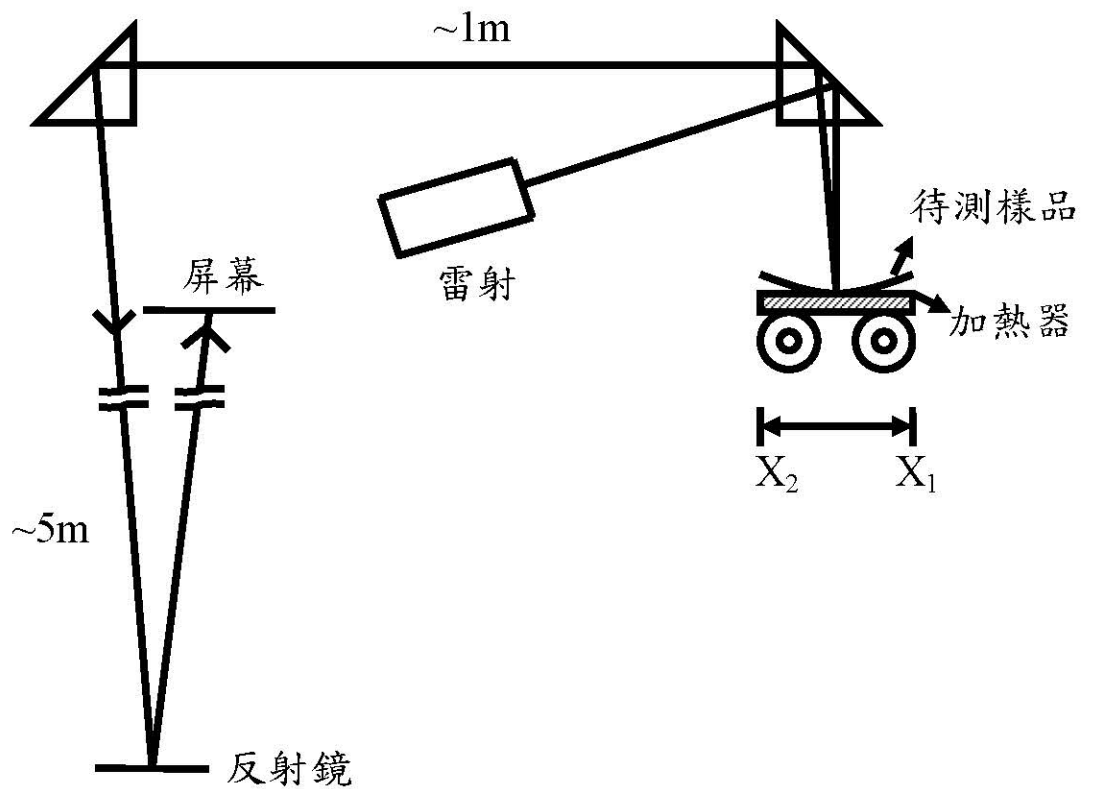
圖三 說明樑彎曲法的實驗裝置示意圖。

(a) 使用顯微鏡測量偏移量。

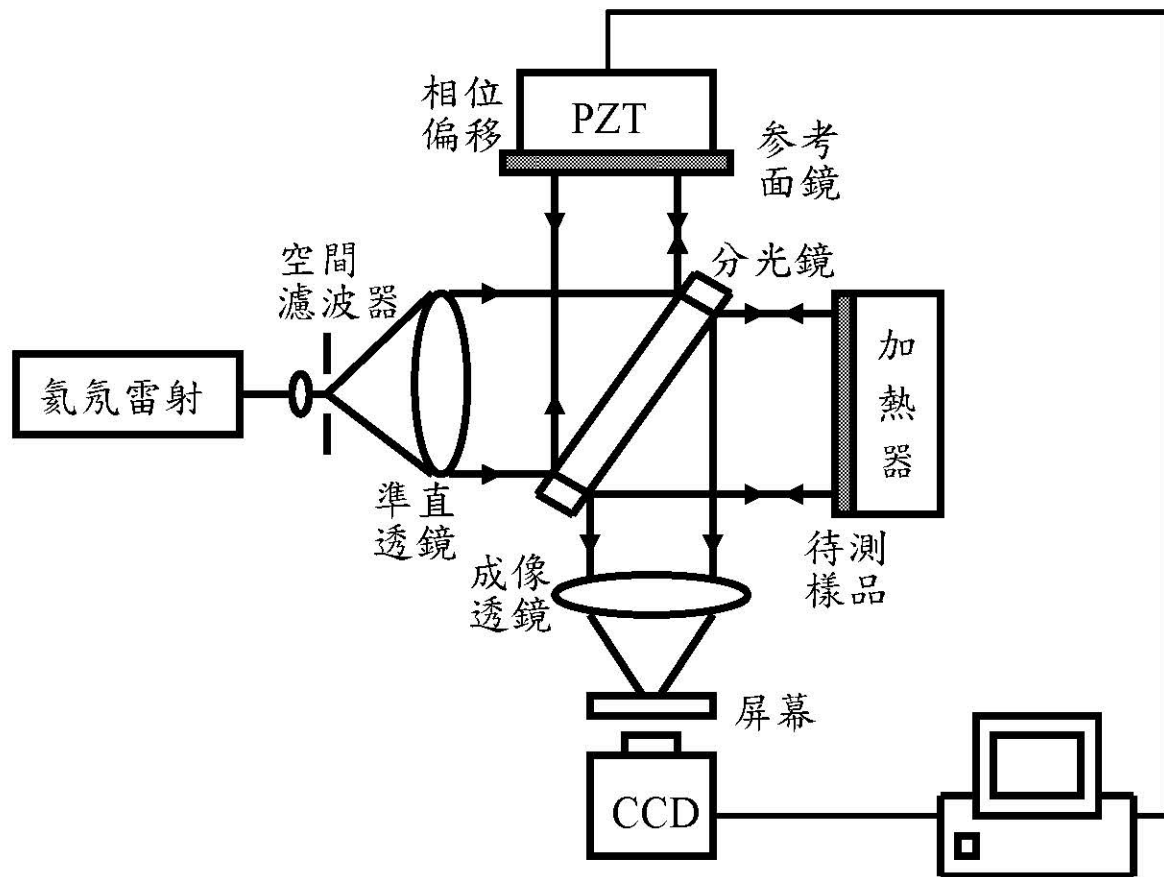
(b) 利用光干涉法測量偏移量。



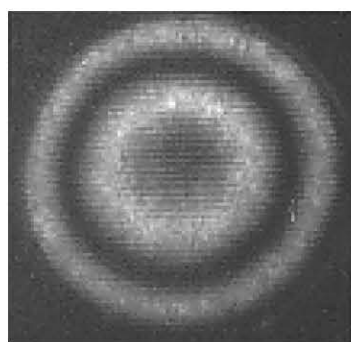
圖四 說明圖片法的實驗裝置示意圖。



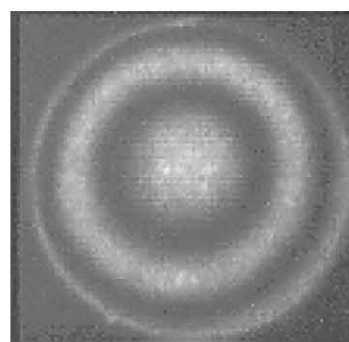
圖五 說明雷射光槓桿反射技術的實驗裝置示意圖。



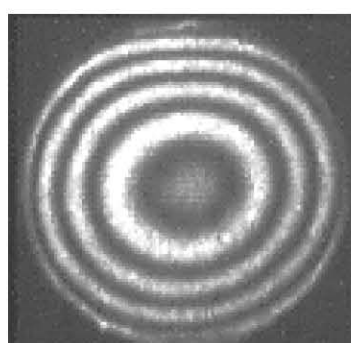
圖六 說明干涉相移技術的實驗裝置示意圖。



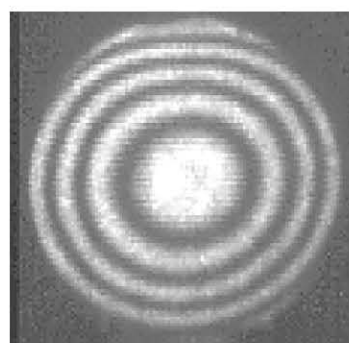
(a)



(b)



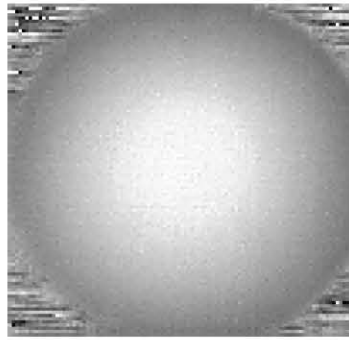
(c)



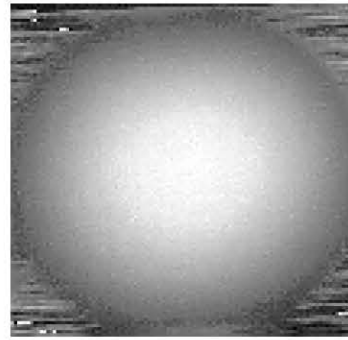
(d)

圖七 氧化鋁薄膜蒸鍍前後之基板相移干涉圖

- (a) 蒸鍍前 0° 相移干涉圖。
- (b) 蒸鍍前 180° 相移干涉圖。
- (c) 蒸鍍後 0° 相移干涉圖。
- (d) 蒸鍍後 180° 相移干涉圖。

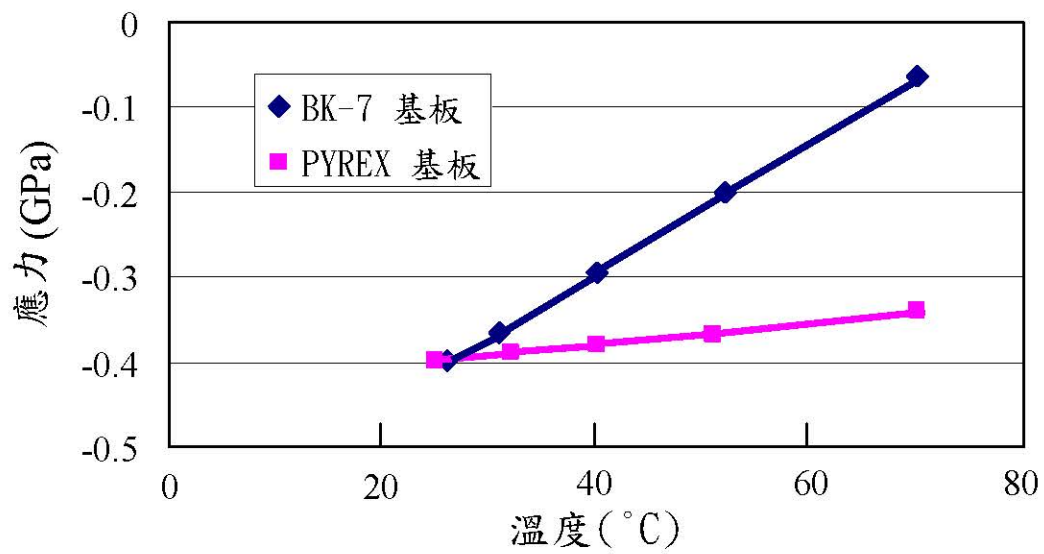


(a) 蒸鍍前



(b) 蒸鍍後

圖八 氧化鋁薄膜蒸鍍前後基板干涉相位圖(a) 200 個灰階代表 2 個波長(b) 200 個灰階代表 5 個波長。



圖九 五氧化二鉬薄膜鍍在不同基板上的應力對量測溫度之關係圖。