

沉积气压对溅射氮化铝薄膜结构和光学性能的影响

黄美东 杜 姗 王丽格 张琳琳

(天津师范大学物理与电子信息学院, 天津 300387)

摘要 采用射频反应磁控溅射系统,在 K9 双面抛光玻璃基底上制备氮化铝薄膜,通过实验测试并结合数值拟合计算研究了其他参数保持不变的条件下,沉积气压对其结构和光学性能的影响。薄膜的微观结构通过 X 射线衍射和原子力显微镜进行表征;利用光栅光谱仪测试了各薄膜样品的透射谱,在此基础上利用包络线法拟合分析得到了薄膜的折射率。结果表明,所获得的 AlN 薄膜样品呈晶态,其晶格属六方晶系,沉积气压增大对 AlN 薄膜的生长取向有一定影响。薄膜在可见光及近红外区域透明,表面平整、致密,结晶状况良好,薄膜的折射率和沉积速率均随沉积气压增大而减小。初步讨论和分析了沉积气压对结构和光学性能的影响机理。

关键词 薄膜; AlN 薄膜; 沉积气压; 反应磁控溅射; 透射谱

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.s107003

Influences of Deposition Pressure on Structures and Optical Properties of Sputtered Aluminum Nitride Films

Huang Meidong Du Shan Wang Lige Zhang Linlin

(College of Physics and Electronic Information, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China)

Abstract Aluminum nitride (AlN) films are fabricated on well polished K9 glass substrate by reactive radio frequency (RF) magnetron sputtering technique. Influence of deposition pressure on microstructure and properties of AlN films is investigated, as other deposition parameters are kept as constants. Experiments as well as simulation are carried out to investigate microstructures and optical properties of the films in terms of deposition pressure. The results indicate that the AlN films are crystalline and the deposition pressure influences orientation of the crystallites. The films are transparent according to the transmittance spectra. The refractive index, obtained by simulation of the transmittance spectra using envelope method, and the deposition rate of the films decreases with increasing deposition pressure. The mechanism of effects of deposition pressure on structure and optical properties of AlN films is tentatively analyzed.

Key words thin films; AlN film; deposition pressure; reactive magnetron sputtering; transmittance spectrum

OCIS codes 310.6870; 160.4760

1 引 言

氮化铝薄膜具有一系列优良的物理和化学性质,如高机电耦合系数、高声传播速度、高电阻率、高热导率、高的硬度和良好的光学性能,在电、光、声和力学等方面有广阔的应用前景^[1~3]。目前,许多成膜方法均可用于 AlN 薄膜的制备,其中常用的方法有磁控溅射法^[4~6]、脉冲激光沉积法^[7]、化学气相沉积法^[8]等。在这些方法中,磁控溅射是应用最广泛的在制备具有特殊功能的薄膜方面具有独特的优

势,如基体温度低、沉积速率快、薄膜成分均匀、性能稳定等,人们可以通过选择适当的工艺参数控制 AlN 薄膜的微观组织结构、表面形貌和光学、压电等性能^[9]。

影响 AlN 薄膜结构和性能的影响因素较多,其中最主要的几个是基底偏压、沉积温度和气压等。偏压和沉积温度对磁控溅射 AlN 的结晶取向有较为明显的影响,在较低的偏压和沉积温度下,AlN 薄膜中(002)晶面易于择优生长,而当负偏压大于

收稿日期: 2011-07-18; 收到修改稿日期: 2011-08-25

基金项目: 国家自然科学基金(61078059)和天津师范大学学术创新推进计划(52X09038)资助课题。

作者简介: 黄美东(1972—),男,博士,副教授,主要从事光学功能薄膜方面的研究。E-mail: semdfxwf@yahoo.com

75 V、温度高于 400 °C 时,择优取向变为(100)^[10]。沉积气压对 AlN 的极性分布^[11]、微观结构^[12]等有着较大的影响。有报道表明,靶/基距^[13]、溅射靶磁场^[14]等对 AlN 薄膜的结构和性能也有不同程度的影响。目前对 AlN 的研究中,普遍关注其结构和介电性能,但对光学性能的研究鲜见报道。

本文采用反应磁控溅射法制备 AlN 薄膜,通过 X 射线衍射(XRD)、原子力显微镜(AFM)及光栅光谱仪,研究沉积气压对薄膜的结构、表面形貌及其光学性能的影响。

2 实验方法

采用 FJL560CI2 型高真空射频磁控溅射系统,在 K9 双面抛光玻璃基底上制备 AlN 薄膜。溅射铝靶的纯度为 99.99%,工作气体是纯度为 99.999% 的 Ar 和 99.999% 的 N₂,靶基间距为 7 cm。沉积前,玻璃基底依次用无水乙醇和丙酮分别超声清洗 10 min,烘干后固定于样品台上。当本底真空高于 4×10^{-4} Pa 时,为了对样品基底表面再进行清洗,通入 Ar 调节气压到 3 Pa,施加 300 V 负偏压,清洗 3~5 min。为了考察沉积气压对 AlN 薄膜结构和光学性能的影响,在所有薄膜样品的制备过程中,其他参数基本保持不变:溅射功率均为 120 W,溅射气体 Ar 与 N₂ 流量比保持为 60 sccm:6 sccm(sccm 为标准状态下 mL/min),施加到基底的负偏压均保持为 80 V,镀膜时间为 1.5~2.0 h。通过改变真空系统的抽气速率来调节沉积气压,在沉积气压从 1.0 Pa 减小到 0.15 Pa 条件下制备 AlN 薄膜。利用 XRD、AFM 及光栅光谱仪等考察了沉积气压对薄膜结构和光学性能的影响。

3 结果与讨论

3.1 沉积气压对 AlN 薄膜沉积速率的影响

利用磁控溅射制备薄膜,沉积气压是一个重要的实验参数,它对沉积速率也有影响。图 1 是 AlN 薄膜沉积速率随沉积气压变化情况。由图 1 可知,气压为 0.15 Pa 时,沉积速率可达 14.4 nm/min;当气压为 1.0 Pa 时,沉积速率为 10.0 nm/min。随着沉积气压的增大,AlN 薄膜沉积速率减小。这是因为沉积气压较低时,溅射粒子的平均自由程较大,经过同样距离碰撞的次数少,沉积速率较大;当沉积气压较高时,溅射粒子的平均自由程小,经过同样距离碰撞的次数较多,因而沉积速率较小。

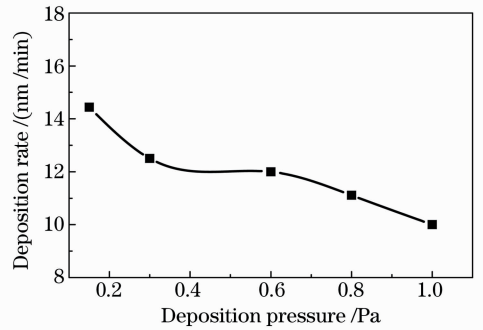


图 1 沉积速率与沉积气压之间的关系

Fig. 1 Deposition rate of AlN thin films at different deposition pressures

3.2 薄膜的结构

由于薄膜厚度小,为了获得足够的衍射强度,并尽量减少基底的影响,采用掠射角 XRD 来分析薄膜的微观结构^[15],X 射线的掠入射角设定为 0.5° 。图 2 给出了不同沉积气压下制备的 AlN 薄膜的 XRD 图谱,均显示出明显的衍射峰,说明所沉积的 AlN 薄膜呈晶态。分析表明,这些 AlN 薄膜晶体结构属于六方晶系。从图 2 还可以看出,沉积气压对 AlN 薄膜的结晶取向有较明显的影响。当气压为 0.15 Pa 时,(100)峰最强,而其他峰都非常弱。随气压增大,其他峰逐渐增强,(100)峰的相对强度逐渐减小。到 0.8 Pa 时,(100)峰几乎消失而最强峰变成了(101)。当气压增大到 1.0 Pa 时,所有峰都变得模糊,这是因为如图 1 所示,此时沉积速率最小,因而薄膜厚度太小,对 X 射线的衍射强度过弱。

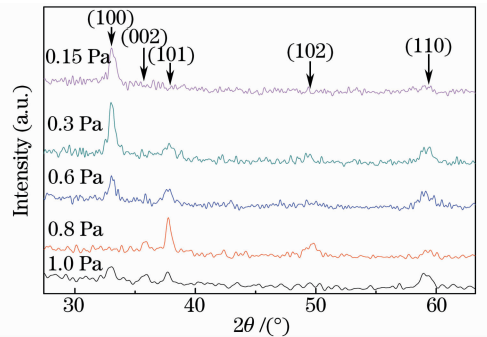


图 2 AlN 薄膜 XRD 图

Fig. 2 XRD patterns of AlN thin films

3.3 AlN 薄膜的表面形貌

图 3 是在不同沉积气压条件下制备 AlN 薄膜的 AFM 三维视图,观测范围为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ 。从图可看出,薄膜表面的结晶状况良好。利用 AFM 图像分析软件对薄膜样品的表面粗糙度作了定量分析,并用算术平均粗糙度和均方根(RMS)粗糙度来表征,如图 4 所示,可以看出,沉积气压在 0.6 Pa

时,薄膜表面粗糙度最小。决定薄膜生长的表面形貌主要有三个因素:沉积、脱附和表面扩散,膜的聚集随着表面迁移率的增加而增加^[16]。沉积气压对薄膜表面形貌的影响主要表现在:沉积气压较小时,溅射粒子数量较少,使得溅射到基底表面的粒子能

量较低,表面扩散迁移率较低;沉积气压较高时,溅射粒子的平均自由程较小,同样使得溅射到基底表面的粒子能量较低,表面扩散迁移率降低,薄膜表面较为粗糙。

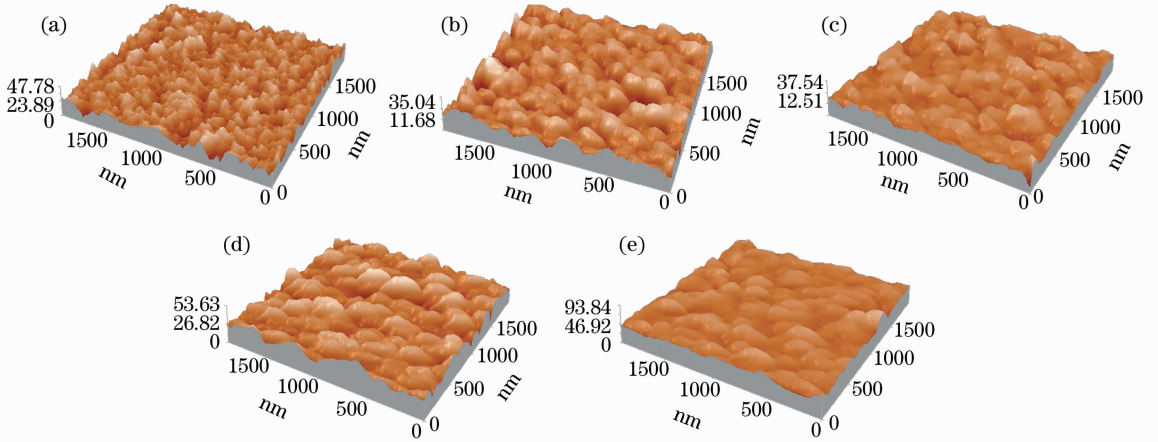


图3 不同沉积气压下 AlN 薄膜的表面形貌。(a) $P=0.15$ Pa; (b) $P=0.3$ Pa; (c) $P=0.6$ Pa; (d) $P=0.8$ Pa; (e) $P=1.0$ Pa

Fig. 3 Surface morphology of AlN films by AFM at different deposition pressures. (a) $P=0.15$ Pa; (b) $P=0.3$ Pa; (c) $P=0.6$ Pa; (d) $P=0.8$ Pa and (e) $P=1.0$ Pa

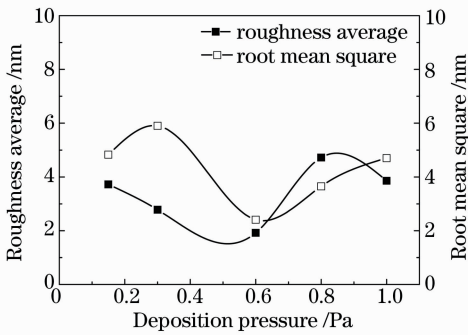


图4 薄膜表面粗糙度与沉积气压的关系

Fig. 4 Surface roughness of AlN films at different working pressures

3.4 AlN 薄膜的光学性能

不同沉积气压下制备的 AlN 薄膜的紫外-可见光透射图谱由 WGD-8 型组合式多功能光栅光谱仪测得,如图 5 所示,其测量波长为 200~800 nm。由图 5 可知,当入射波长小于 300 nm 时,样品的透射率低,是由于玻璃基底对紫外光波具有强吸收造成的;在波长大于 300 nm 的可见光波段,薄膜样品的透射率高,说明该薄膜对可见光吸收小,属于透明膜。

通过透射谱线可以定性比较薄膜的厚度。由光在介质中的传播规律可知^[17],对于薄膜折射率高于基底折射率(玻璃基底折射率为 1.55)的情况,当薄膜的光学厚度为 $nd = \frac{2m+1}{4}\lambda$ (m 取整数),即 $\frac{\lambda}{4}$ 的

奇数倍时,透射率为极小值,在透射谱中表现为波谷;当 $nd = \frac{m}{2}\lambda$,即 $\frac{\lambda}{4}$ 的偶数倍时,透射率为极大值,在透射谱中表现为波峰。对于一定厚度的薄膜,当波长发生连续变化时,就出现如图 5 所示的透射谱图。在相同的波长范围,透射谱线上相应波峰(谷)间距越小,薄膜的光学厚度越大。由图 5 可知,沉积气压在 0.3~0.8 Pa 时薄膜波峰(波谷)较多且间距较小,说明在此沉积气压条件下制备的薄膜光学厚度较大。

根据 Swanepoel 的方法^[18],计算薄膜的折射率 n 和厚度 d 。折射率

$$n = [N + (N^2 - s^2)^{1/2}]^{1/2}$$

式中 $N = 2s \frac{T_M - T_m}{T_M T_m} + \frac{s^2 + 1}{2}$, s 为基底的折射率, T_M 和 T_m 是 $T(\lambda)$ 曲线上每一个 λ 所对应的透射谱的最大值和最小值。由此方法计算出 AlN 薄膜的平均折射率如图 6 所示,计算得到的薄膜厚度与用台阶仪实际测得的结果对比示于表 1。从表 1 可以看出,计算厚度比实际测量的值稍大,这可能是由于在用包络线法计算时,完全忽略了薄膜的吸收;此外,做包络线时作图误差也可能引起计算值与实测值的偏差。根据图 6,在不同沉积气压条件下制备的 AlN 样品,其折射率随沉积气压增大而减小,这是

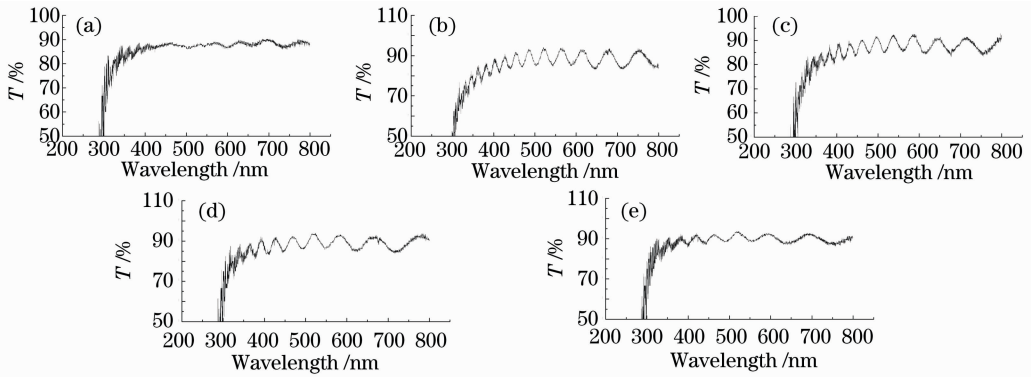


图 5 AlN 薄膜在不同沉积气压下的透射谱。(a) $P=0.15$ Pa; (b) $P=0.3$ Pa; (c) $P=0.6$ Pa; (d) $P=0.8$ Pa; (e) $P=1.0$ Pa

Fig. 5 Transmittance spectra of AlN thin films at different deposition pressures. (a) $P=0.15$ Pa; (b) $P=0.3$ Pa; (c) $P=0.6$ Pa; (d) $P=0.8$ Pa; (e) $P=1.0$ Pa

因为在衬底温度相同时,薄膜的结晶度主要由到达基底的粒子的平均能量决定。溅射气压高时,粒子的平均自由程较短,相互碰撞几率大,粒子动能损耗较大;同时在溅射电流不变的情况下,溅射气压增大也会使溅射电压下降,这两方面的作用使得溅射到衬底上粒子的能量和表面扩散迁移率降低,导致 AlN 成膜时致密度较差。因此,在较低气压下沉积的膜较致密,折射率较高,而在较高气压下制得的膜较疏松多孔,折射率较低。

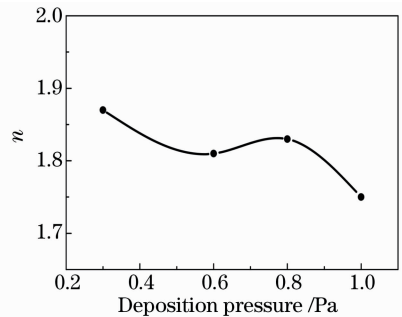


图 6 AlN 薄膜的折射率与沉积气压间关系
Fig. 6 Refractive indices of AlN thin films at different deposition pressures

表 1 实际测量和通过计算得到的不同气压下制备的薄膜厚度对比

Table 1 Measured and calculated thickness of the films at different pressures

Deposition pressure /Pa	0.15	0.3	0.6	0.8	1.0
Measured thickness /nm	1732	1496	1443	1328	1201
Calculated thickness /nm	1785	1581	1485	1376	1253
Relative error /%	3.06	5.7	2.9	3.6	4.3

4 结 论

采用反应磁控溅射系统,在不同沉积气压下制备 AlN 薄膜,并研究了气压对薄膜结构和性能的影响。XRD 测试结果表明,所得到的 AlN 薄膜为晶态,沉积气压对 AlN 薄膜的结晶取向有影响;AFM 结果显示,在沉积气压为 0.6 Pa 时,薄膜表面粗糙度较小;薄膜在可见光及近红外区域透射率较高,属透明薄膜,随沉积气压增大,薄膜的折射率减小,薄膜沉积速率也减小。

参 考 文 献

1 P. K. Kuo, G. W. Auner, Z. L. Wu. Microstructure and thermal conductivity of epitaxial AlN thin films[J]. *Thin Solid Films*, 1994, **253**(1-2): 223~227

2 D. Liufu, K. C. Kao. Piezoelectric dielectric and interfacial properties of aluminum nitride films[J]. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1998, **16**(4): 2360~2366
 3 X. S. Miao, Y. C. Chan, E. Y. B. Pun. A new protective AlN film for organic photoconductor[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(2): 184~186
 4 S. Venkataraj, D. Severin, R. Drese *et al.*. Structural, optical and mechanical properties of aluminium nitride films prepared by reactive DC magnetron sputtering[J]. *Thin Solid Films*, 2006, **502**(1-2): 235~239
 5 I. C. Oliveira, K. G. Grigorov, H. S. Macie *et al.*. High textured AlN thin films grown by RF magnetron sputtering: composition, structure, morphology and hardness[J]. *Vacuum*, 2004, **75**(4): 331~338
 6 H. E. Cheng, T. C. Lin, W. C. Chen. Preparation of [002] oriented AlN thin films by mid-frequency reactive sputtering technique[J]. *Thin Solid Films*, 2003, **425**(1-2): 85~89
 7 C. Ristoscu, C. Ducu, G. Socol *et al.*. Structural and optical characterization of AlN films grown by pulsed laser deposition

- [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2005, **248**(1-4): 411~415
- 8 A. P. Huang, G. J. Wang, S. L. Xu *et al.*. Oriented AlN films prepared with solid AlCl₃ source by bias assisted Cat-CVD[J]. *Mater. Sci. Engng. B*, 2004, **107**(2): 161~165
- 9 M. Akiyama, C. N. Xu, K. Nonaka *et al.*. Statistical approach for optimizing sputtering conditions of highly oriented aluminum nitride thin films[J]. *Thin Solid Films*, 1998, **315**(1-2): 62~65
- 10 F. Medjani, R. Sanjinésa, G. Allidia *et al.*. Effect of substrate temperature and bias voltage on the crystallite orientation in RF magnetron sputtered AlN thin films[J]. *Thin Solid Films*, 2006, **515**(1): 260~265
- 11 Toshihiro Kamohara, Morito Akiyama, Naohiro Ueno *et al.*. Influence of sputtering pressure on polarity distribution of aluminum nitride thin films[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(24): 243507
- 12 Hwanchul Lee, Guenhong Kim, Soonku Hong *et al.*. Influence of sputtering pressure on the microstructure evolution of AlN thin films prepared by reactive sputtering [J]. *Thin Solid Films*, 1995, **261**(1-2): 148~153
- 13 G. F. Iriarte, J. G. Rodriguez, F. Calle. Effect of substrate-target distance and sputtering pressure in the synthesis of AlN thin films[J]. *Microsystem Technologies*, 2011, **17**(3): 381~386
- 14 G. F. Iriarte. Influence of the magnetron on the growth of aluminum nitride thin films deposited by reactive sputtering[J]. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 2010, **28**: 193~198
- 15 W. H. Zachariasen. *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals* [M]. Beijing: Oversea Publishing House, 2004. 175~176
- 16 Zheng Weitao. *Thin Film Materials and Technology* [M]. Beijing: Chemical Engineering Press, 2007. 86~87
郑伟涛. *薄膜材料与薄膜技术* [M]. 北京: 化学工业出版社, 2007. 86~87
- 17 M. Born, E. Wolf. *Principles of Optics* [M]. Yang Jiasun Transl. Beijing: Electronic Engineering Press, 2005. 54~59
马科斯·玻恩, 埃米尔·沃尔夫. *光学原理* [M]. 杨葭荪等译. 北京: 电子工业出版社, 2005. 54~59
- 18 R. Swanepoel. Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon[J]. *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, 1983, **16**(12): 1214~1234

栏目编辑：马沂