

Ta₂O₅ 薄膜的低能离子辅助蒸镀

周九林 张 苑 杨德利
(西南技术物理研究所)

提 要

用低能氧离子辅助蒸镀技术,制备了一系列 Ta₂O₅ 薄膜。观测了薄膜的微结构,测量了薄膜的光吸收和光散射。实验指出,离子束轰击和基片加热同时进行,能够制得透明而均匀的 Ta₂O₅ 薄膜。
关键词: 薄膜微结构; Ta₂O₅ 薄膜; 离子辅助蒸镀。

一、引 言

近年来,离子辅助蒸镀技术在薄膜光学中得到了日益扩大的应用。离子辅助技术可以改变薄膜的微结构,改进薄膜的特性,改善薄膜的应力状态。研究离子辅助蒸镀对某些光学薄膜的性能的影响的文章很多^[1~6]。但是迄今为止,很少有文献详尽报道关于 Ta₂O₅ 薄膜的离子辅助蒸镀实验^[7]。

Ta₂O₅ 薄膜结构致密,表面平滑,是一种优质的光学薄膜材料。从 1979 年开始,才见这方面的报道^[8]。

Ta₂O₅ 的蒸发性能稳定,在成膜过程中折射率几乎没有变化。而且,它还可以作为一种稳定剂掺入到别的氧化物膜料中,以改善薄膜的特性。例如,将 Ta₂O₅ 混入 ZrO₂ 中,可以消除纯 ZrO₂ 膜的复向非均匀性,制得折射率恒定的均匀薄膜^[9]。

值得注意的是,文献[10]报道了 33 层 Ta₂O₅/SiO₂ 可见光反射膜,最大反射率为 $R_m = 0.9996 \pm 0.0002$ 。并且可以做到使 Ta₂O₅ 薄膜的吸收和散射损耗都很小。近年来用离子束溅射技术制备了 Ta₂O₅ 薄膜^[11~13],它显示了极其优越的光学性能。在可见区,消光系数 $k < 10^{-4}$,折射率 $n = 2.18$,而且没有色散。因此,实验研究 Ta₂O₅ 薄膜的离子辅助蒸镀,探索最佳的成膜条件,无疑是很有实用意义的。

本文用低能氧离子辅助蒸镀技术,制备了 Ta₂O₅ 薄膜。对薄膜的微结构、光散射和光吸收进行了一系列的实验研究。离子束能量低于 250 eV。实验发现,要制得无吸收的 Ta₂O₅ 薄膜,必需使离子束轰击和基片加热同时进行。

二、实 验

实验在光学镀膜机 DMD-450 中进行。蒸镀前的背景真空度为 $(1 \sim 3) \times 10^{-5}$ Torr,离子源工作时的真空度为 $(1 \sim 2) \times 10^{-4}$ Torr。纯度为 99.99% 的膜料 Ta₂O₅ 用 L 型直射电子

枪蒸发,蒸镀速率为 $3\sim 5 \text{ \AA}/\text{sec}$ 。

离子束由我们实验室自制的 Kaufman 型单栅离子源产生。单栅离子源的特点是,束流密度大,离子束能量低,这往往是制备光学薄膜所需要的,因为过高的离子能量会引起再溅射而造成薄膜的缺氧性^[4,5,7]。此外,单栅源远避免了多栅系统结构上“对栅”的困难。

离子束出口直径为 4 cm,没有装设专门的电荷中和器。实验发现,L 型电子枪工作时,次级电子具有明显的中和作用。

Ta₂O₅ 薄膜镀在 K₉ 光学玻璃基片上,同时为了分析薄膜的微结构,薄膜也镀在透射电镜专用的铜网上。透射电镜型号为 JGM-100X。薄膜的光谱透射曲线用日立 340 分光光度计测量。薄膜的光散射用清华大学精仪系的激光散射仪测量。

三、结 果

表 1 列出了几种 Ta₂O₅ 薄膜样品的镀制条件。样品序号统贯下文的所有实验资料。

Table 1 Deposition conditions of Ta₂O₅ films

Sample No.	Ion type	Pressure (O ₂) (Torr)	Substrate temperature (°C)	Ion energy (eV)	Current density (μA/cm ²)	Film thickness (nm)
1	—	2×10^{-4}	150	—	0	≈ 130
2	O ₂ ⁺ /O ⁺	2×10^{-4}	Ambient	140	53	≈ 130
3	O ₂ ⁺ /O ⁺	2×10^{-4}	Ambient	230	105	≈ 130
4	O ₂ ⁺ /O ⁺	2×10^{-4}	150	220	158	≈ 130
5*	O ₂ ⁺ /O ⁺	2×10^{-4}	150	140	263	≈ 130
6	O ₂ ⁺ /O ⁺	2×10^{-4}	150	220	158	628

* Note: The ion beam broke off prior to the thickness prescribed.

1. 薄膜的微结构

为节省篇幅,我们仅在图 1 列示出样品 1 和样品 4 的透射电镜显微照片。图的上部是电子衍射图,下部是表面形貌图。可以看到,未经离子轰击的常规工艺蒸镀的 Ta₂O₅ 薄膜,其表面形貌细腻,但呈现大量的脉路式的沟壑,而经离子轰击后,柱体变得粗大,但却排列得更紧密。随着离子流密度增高,柱体变得更加粗大。未经离子轰击的 Ta₂O₅ 薄膜,呈现典型的无定形结构;而经离子轰击后,随着离子能量增大,柱体排列的序化开始出现,取向程度逐步提高。

对于基片不加热的 Ta₂O₅ 薄膜,经离子轰击后(样品 2 和 3),透射电镜形貌图显示出极大的不均匀性,膜面出现大块的“菌斑”。

2. 薄膜的光吸收

图 2、图 3 和图 4 是不同条件下镀制的 Ta₂O₅ 薄膜的透射光谱曲线。图中各曲线的标号与表 1 的样品序号相对应。

曲线 1 是用常规工艺镀制的 Ta₂O₅ 薄膜的光谱透射率,即基片加热(150°C),同时通入氧气。显然,薄膜具有明显的光吸收。

曲线 2 和 3 都是在蒸镀薄膜时基片不加温,但用了氧离子轰击。可以看到,这样的薄膜

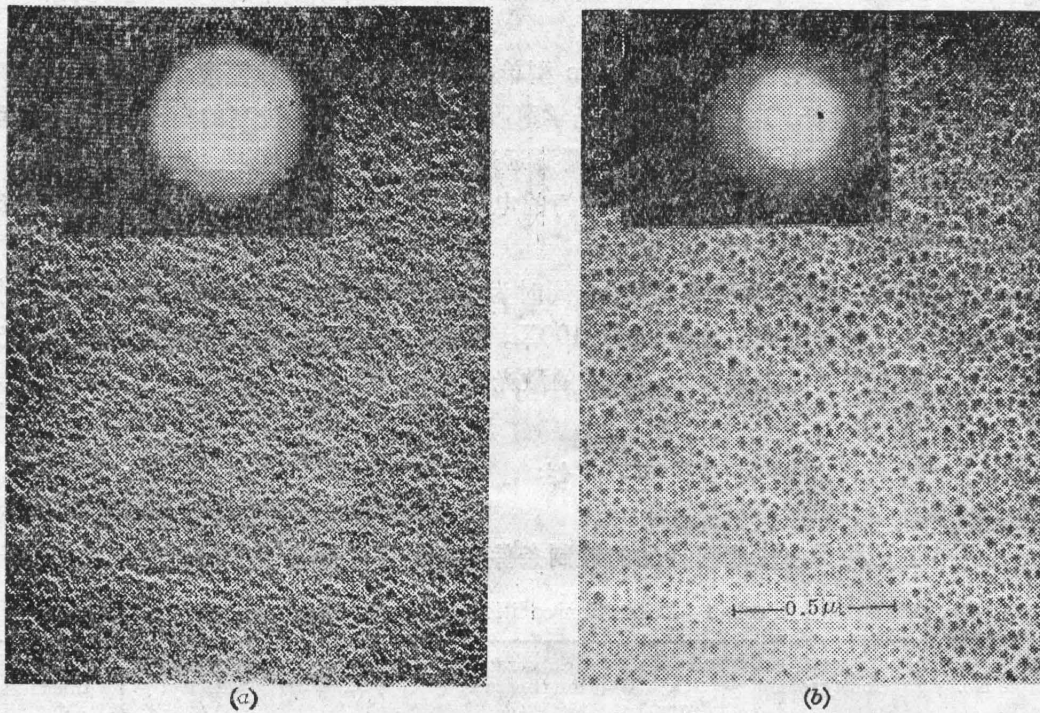


Fig. 1 Transmission electron micrographs and diffraction patterns of Ta_2O_5 films. (a) sample No. 1 deposited at substrate temperature $150^\circ C$ without ion bombardment; (b) sample No. 4 deposited at substrate temperature $150^\circ C$ with ion bombardment of beam energy $220 eV$, current density $158 \mu A cm^{-2}$

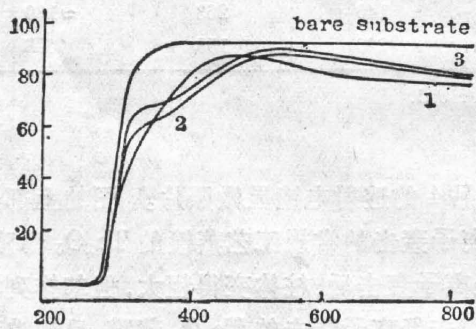


Fig. 2 Spectral transmittance of Ta_2O_5 film sample No. 1, 2, 3

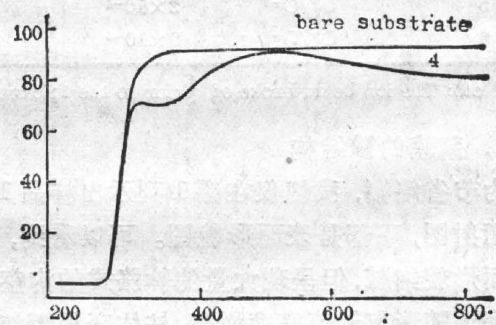


Fig. 3 Spectral transmittance of Ta_2O_5 film sample No. 4

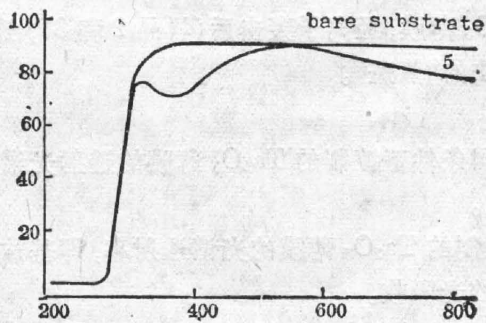


Fig. 4 Spectral transmittance of Ta_2O_5 film sample No. 5

依然有大的吸收,只不过随着氧离子能量和束流密度加大,吸收有所减小。

曲线 4 反应了比较完善的镀制工艺。那就是蒸镀薄膜时,基片加热,同时施用氧离子轰击,这样可以制得光学透明的 Ta₂O₅ 薄膜。

非常有趣的是样品 5。薄膜蒸镀时基片加热,同时也用了氧离子轰击,但在膜层达到规定的厚度之前,由于偶然原因离子流中断,于是在没有氧离子辅助的情况下,在中性氧中镀完了膜层。曲线 5 表明,这样的薄膜具有微弱的光吸收。

图 5 表示出样品 6 的透射率光谱曲线。样品 6 的成膜条件与样品 4 相同,只不过有意镀成厚膜,其几何厚度为 628nm。由图可见,低能氧离子辅助蒸镀的 Ta₂O₅ 薄膜是均匀的,而经氧离子轰击的 TiO₂ 薄膜却依然存在着非均匀性^[5]。

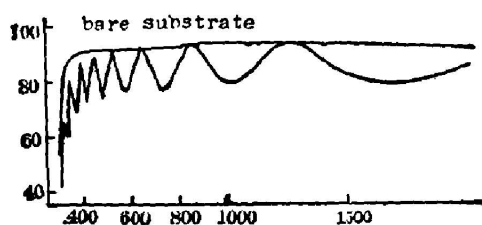


Fig. 5 Spectral transmittance of Ta₂O₅ film sample No. 6

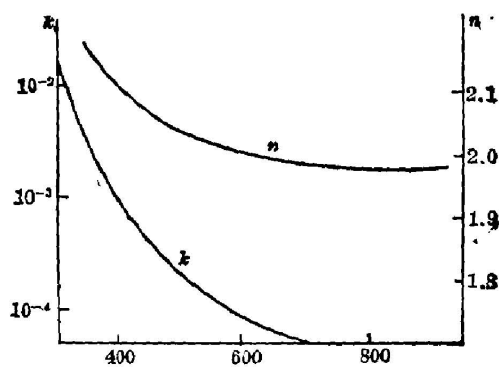


Fig. 6 Dispersion curves of refractive index and extinction coefficient of Ta₂O₅ film sample No. 4, 6

根据图 5 的曲线,我们采用透射率极值包络法^[11],求解出薄膜样品 6 的折射率 n 和消光系数 k ,如图 6 所示。应当注意,薄膜的基片温度仅仅 150°C,而通常的氧化物成膜基片温度为 250~300°C。若将 Ta₂O₅ 薄膜的基片温度适当提高,消光系数 k 必将进一步减小,也就是说曲线 $k \sim \lambda$ 会向短波方面移动。

3. 薄膜的光散射

薄膜的光散射直接与薄膜的微结构性质相关联。金属薄膜的光散射仅仅取决于薄膜的表面微结构,而介质薄膜的光散射则由体内散射和表面散射两部分组成。

低能离子束对成长中的薄膜进行轰击,通过动量传递,使膜料淀积原子(分子)的迁移率增大,有利于减少薄膜结构的缺陷,同时适当的离子束轰击,对薄膜表面形貌也有“熨平”作用。离子束对薄膜结构和表面的修饰作用,有可能减小薄膜的光散射损耗。

任何一个起伏的表面,都可描述为许多个不同空间频率的组合。若能测出薄膜不同空间频率的散射相对值,则可以得到更多的结构信息。我们用激光散射仪只能测得薄膜的积分散射值,也就是 Ta₂O₅ 薄膜在经离子束轰击与不轰击的各种情况下,积分散射值的变化。虽然积分散射测量不能区分薄膜表面高、低空间频率的结构变化,但完全可以反应离子束轰击对散射的影响。表 2 列出表 1 中的几种 Ta₂O₅ 薄膜样品的积分散射值。这些薄膜镀在上一批抛光的 K₉ 玻璃片上,使薄膜衬底表面状况尽量一致。

由表可见,对热基片薄膜,离子束轰击使光散射明显减小。对照图 1(a)和(b)的形貌照片,我们可以合理地推想,热基片使膜料的淀积分子(原子)具有一定的迁移率,离子束轰击使迁移率大大提高,其结果使薄膜的结构更密实,体内散射减小,并且淀积分子(原子)将充

Table 2 Integral scattering values of Ta₂O₅ films

Sample No.	Substrate temperature (°C)	Ion energy (eV)	Current density (μA/cm ²)	Scatter ratio (10 ⁻⁴)
1	150	—	0	4.8
2	Ambient	140	53	4.5
3	Ambient	230	105	3.7
4	150	220	158	3.1

分地填补那些脉络状的沟壑,降低高空间频率的光散射;同时离子束对表面的“熨平”作用还能消除其它散射缺陷,这些都是压抑光散射的有利影响。但是另一方面,离子轰击又使薄膜柱体变得粗大,柱体边界成为新的散射源,随着离子能量和束流密度增大,柱体边界的散射贡献进一步增长,这又是有害的倾向。因此,在有利影响和有害倾向之间必然存在一个最佳状态,即离子能量和束流密度取某一最佳值,使薄膜的光散射损耗最小。

四、结 语

从上述实验可以认为:

1. 低能氧离子轰击与基片加热同时进行,可以制得透明的、均匀的 Ta₂O₅ 薄膜。
2. 适当的离子轰击能够压抑 Ta₂O₅ 薄膜的光散射。就减小散射而论,离子束能量和束流密度应当有最佳值,使薄膜的光散射为最小。
3. Ta₂O₅ 薄膜在成膜时有一个氧化过程,要完成完全氧化过程,形成化学计量学组成的 Ta₂O₅ 薄膜,必需有足够的反应能量。基片加热是反应能量的重要来源。原则上讲,对反应能量作化学动力学估算应该是不能的。

参 考 文 献

- [1] P. J. Martin *et al.*; *Appl. Opt.*, 1983, **22**, No. 1 (Jan), 178.
- [2] J. R. McNeil *et al.*; *Appl. Opt.*, 1984, **23**, No. 4 (Feb), 552.
- [3] J. R. McNeil *et al.*; *Appl. Opt.*, 1985, **24**, No. 4 (Feb), 486.
- [4] G. A. Al-Jumaily *et al.*; *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1985, **3**, No. 3 (May-Jun), 651.
- [5] P. J. Martin *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1984, **55**, No. 1 (Jan), 235.
- [6] B. P. Netterfield *et al.*; *Appl. Opt.*, 1985, **24**, No. 14 (Jul), 2267.
- [7] J. J. McNally *et al.*; *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1986, **4**, No. 3 (May-Jun), 437.
- [8] P. Baumeister; *Appl. Opt.*, 1979, **18**, No. 1 (Jan), 111.
- [9] USP 3783010.
- [10] O. Arnon, P. Baumeister; *Appl. Opt.*, 1978, **17**, No. 18 (Sep), 2913.
- [11] H. Demiryont *et al.*; *Appl. Opt.*, 1985, **24**, No. 4 (Feb), 490.
- [12] S. M. Rossnagel, J. B. Sites; *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1984, **2**, No. 2 (Apr-Jun), 376.
- [13] J. B. Sites *et al.*; *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1985, **3**, No. 3 (May-Jun), 656.

Low-energy ion-assisted deposition of Ta₂O₅ films

ZHOU JIULIN, ZHANG WAN AND YANG DELI
(South-West Technical Physics Institute, Chengdu)

(Received 4 May 1987; revised 3 July 1987)

Abstract

A series of Ta₂O₅ films have been made by low-energy oxygen-ion assisted deposition. The microstructures of the films have been observed. The optical absorptance and scattering have been measured too. Experiments show that transparent and homogeneous Ta₂O₅ films can be obtained only if ion bombardment and heating of the substrate are performed simultaneously during deposition.

Key words: film microstructure; Ta₂O₅ films; ion assisted deposition.