

# 离子束溅射制备 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 和 $\text{SiO}_2$ 薄膜的 光学、力学特性和微结构

袁文佳, 沈伟东, 郑晓雯, 杨陈楹, 章岳光, 方波, 沐雯, 陈超楠, 刘旭

浙江大学光电科学与工程学院现代光学仪器国家重点实验室, 浙江 杭州 310027

**摘要** 研究了离子束溅射 (IBS) 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$  和  $\text{SiO}_2$  薄膜的光学特性、力学特性以及薄膜微结构, 分析了辅助离子源电压对薄膜特性的影响, 并将电子束蒸发、离子辅助沉积和 IBS 制备的薄膜进行了对比。研究结果表明, IBS 制备的薄膜具有更好的光学特性和微结构, 同时具有较大的压应力、硬度和杨氏模量; 辅助离子源可以改善薄膜的光学特性, 调节薄膜应力和减小薄膜表面粗糙度, 但对硬度和杨氏模量的影响相对较小。在不同的辅助离子源电压下, IBS 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  应力为  $-152 \sim -281$  MPa,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  的应力为  $-299 \sim -373$  MPa,  $\text{SiO}_2$  的应力为  $-427 \sim -577$  MPa; 在合适的工艺参数下, 消光系数可小于  $10^{-4}$ ; 薄膜表面平整, 均方根粗糙度小于 0.2 nm。

**关键词** 薄膜; 光学特性; 机械特性; 应力; 微结构; 离子束溅射

中图分类号 O484.4 文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201737.1231001

## Optical and Mechanical Properties and Microstructures of $\text{Nb}_2\text{O}_5$ , $\text{Ta}_2\text{O}_5$ and $\text{SiO}_2$ Thin Films Prepared by Ion Beam Sputtering

Yuan Wenjia, Shen Weidong, Zheng Xiaowen, Yang Chenying, Zhang Yueguang,  
Fang Bo, Mu Wen, Chen Chaonan, Liu Xu

State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, College of Optical Science and Engineering,  
Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China

**Abstract** The optical and mechanical properties and the microstructures of  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  and  $\text{SiO}_2$  thin films prepared by the ion beam sputtering (IBS) method are studied. The effect of the assisted ion source voltage on the film properties is analyzed. The comparison among films prepared by the electron beam evaporation, ion beam assisted deposition and IBS is also conducted. The study results show that the films prepared by IBS possess better optical performance and microstructures, as well as higher compressive stress, hardness and Young modulus. The assisted ion source is beneficial to improving the optical performance, adjusting the film stress and reducing the surface roughness of thin films, however, it has relatively small influence on the hardness and the Young modulus. Under different assisted ion source voltages, the stress of prepared  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  by IBS is  $-152 \sim -281$  MPa, that of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  is  $-299 \sim -373$  MPa and that of  $\text{SiO}_2$  is  $-427 \sim -577$  MPa. Under proper process parameters, the extinction coefficient can be smaller than  $10^{-4}$  and the film surface is smooth with a root mean square roughness of smaller than 0.2 nm.

**Key words** thin films; optical properties; mechanical properties; stress; microstructure; ion beam sputtering

**OCIS codes** 310.6860; 230.1360; 050.5080; 120.5410; 310.4165

## 1 引 言

物理气相沉积 (PVD) 广泛应用于光学薄膜的制备, 常用 PVD 技术包括电子束蒸发 (EBE)、离子辅助沉

收稿日期: 2017-07-03; 收到修改稿日期: 2017-08-16

基金项目: 国家 863 计划 (2015AA015904)、中国博士后科学基金 (2016M601936)、博士后创新人才支持计划 (BX201600135)、中科院强激光材料重点实验室开放课题

作者简介: 袁文佳 (1986—), 男, 博士研究生, 主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: ywjzju@zju.edu.cn

导师简介: 沈伟东 (1977—), 男, 博士, 教授, 主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: adongszju@hotmail.com (通信联系人)

积(IBAD)、磁控溅射(MS)以及离子束溅射(IBS)<sup>[1-9]</sup>。IBS的沉积粒子动能可达数十电子伏特,制备的薄膜致密,损耗低,抗激光损伤性能较好,并且其离子束能量可以精确控制,沉积速率稳定,可重复性好,在激光技术、光通信技术、航天技术以及引力波探测等领域中都发挥了重要的作用<sup>[10-18]</sup>。

除了光学性能,高质量的薄膜对其自身的力学性能、微结构、环境稳定性以及其他特性的要求也越来越高。薄膜的力学特性主要包括应力、附着力和硬度等,这些特性受到材料和沉积工艺的影响。由于膜层致密,IBS制备的薄膜应力较大,这会使基板弯曲变形,严重时会使薄膜分层龟裂,同时影响薄膜的光学特性。表面形貌是光学薄膜的重要特性之一,粗糙的表面会增强薄膜表面的散射,从而影响光学损耗。 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 和 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 作为常用的氧化物介质材料,在可见和近红外波段具有折射率高和吸收低的优点,并且具有高硬度、很好的热稳定性和化学稳定性。

本文研究了IBS制备的 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 和 $\text{SiO}_2$ 薄膜的光学特性、力学特性(包括应力、硬度和杨氏模量)以及薄膜微结构,对IBS、IBAD和EBE制备的样品的特性进行了对比,分析了辅助离子源的离子束电压对薄膜特性的影响。

## 2 实验条件

双离子束溅射(DIBS)系统结构如图1所示。实验采用美国Veeco公司生产的射频离子源,其频率为13.56 MHz,其中16 cm的射频离子源为溅射源,12 cm的射频离子源为辅助源,靶材为Nb、Ta和 $\text{SiO}_2$ ,背景真空的气压为 $1 \times 10^{-4}$  Pa,离子源的工作气体为Ar和 $\text{O}_2$ 。主离子源通入Ar,其在标准状态下的流量为16 mL/min;辅助离子源通入Ar和 $\text{O}_2$ 的混合气体,二者在标准状态下的流量分别为6 mL/min和18 mL/min;真空室通入 $\text{O}_2$ ,其在标准状态下的流量为25 mL/min。薄膜沉积时的工作气压约为 $5 \times 10^{-2}$  Pa,沉积时基板不加温。在保持主离子源参数、真空度和气体流量都不变的情况下,通过改变辅助离子源参数,研究其对薄膜特性的影响。为了获得合适的沉积速率,将主离子源束流( $I_s$ )设为400 mA,并将电压( $U_s$ )设为1000 V,辅助离子源束流( $I_a$ )设为100 mA,制备 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 薄膜的辅助离子源电压( $U_a$ )为200~800 V,制备 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 和 $\text{SiO}_2$ 薄膜时, $U_a$ 为200~600 V。进行薄膜光学特性分析时,制备 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 和 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 薄膜的基板为BK7,制备 $\text{SiO}_2$ 薄膜基板为ZF1;进行薄膜机械特性分析时,实验采用的基板为BK7;进行薄膜微结构分析时,使用的基板为Si。工件架采用行星转动结构,以改善薄膜的厚度均匀性,基板水平放置,每次实验的沉积时间均为90 min,因沉积速率不同,薄膜的厚度在400~600 nm之间变化。IBS沉积工艺参数见表1。

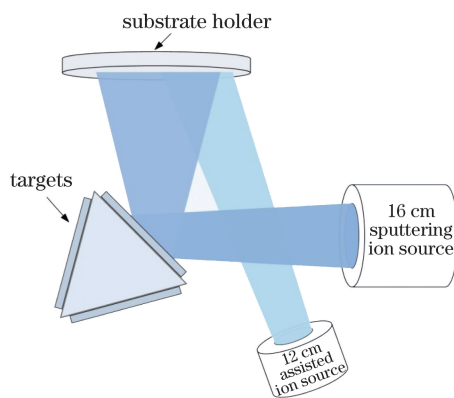


图1 DIBS系统结构示意图

Fig. 1 Structural diagram of DIBS system

采用瑞士Oerlikon Balzers公司生产的BAK600型EBE设备和日本Optorun公司生产的OTFC-1300型IBAD设备制备单层的 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $\text{SiO}_2$ 薄膜样品,并与IBS制备的样品进行对比。EBE和IBAD沉积工艺参数见表2。

表 1 IBS 沉积工艺参数

Table 1 Process parameters of IBS deposition

| Material                       | Sputtering ion source parameter |                 |                                    | Assisted ion source parameter |                 |                                    | Background pressure / (10 <sup>-4</sup> Pa) | Working pressure / (10 <sup>-2</sup> Pa) |
|--------------------------------|---------------------------------|-----------------|------------------------------------|-------------------------------|-----------------|------------------------------------|---|--|
|                                | Beam current /mA                | Beam voltage /V | Gas flow / (mL·min <sup>-1</sup> ) | Beam current /mA              | Beam voltage /V | Gas flow / (mL·min <sup>-1</sup> ) |   |  |
| Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | 400                             | 1000            | 16(Ar)                             | 100                           | 200-800         | 6(Ar), 18(O <sub>2</sub> )         | 1.0   | 5.0                                      |
| Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | 400                             | 1000            | 16(Ar)                             | 100                           | 200-600         | 6(Ar), 18(O <sub>2</sub> )         | 1.0   | 5.0                                      |
| SiO <sub>2</sub>               | 400                             | 1000            | 16(Ar)                             | 100                           | 200-600         | 6(Ar), 18(O <sub>2</sub> )         | 1.0   | 5.1                                      |

表 2 EBE 和 IBAD 工艺参数

Table 2 Process parameters of EBE and IBAD

| Material                       | Temperature /°C |      | Working pressure / (10 <sup>-2</sup> Pa) |      | Deposition rate / (nm·s <sup>-1</sup> ) |      |
|--------------------------------|-----------------|------|--|------|---|------|
|                                | EBE             | IBAD | EBE                                      | IBAD | EBE                                     | IBAD |
| Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | 230             | 200  | 2.0                                      | 2.0  | 0.3                                     | 0.3  |
| Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | 230             | 200  | 2.0                                      | 2.0  | 0.3                                     | 0.3  |
| SiO <sub>2</sub>               | 230             | 200  | 0.3                                      | 1.3  | 0.8                                     | 0.8  |

### 3 实验结果与讨论

#### 3.1 光学特性

采用美国 Perkin-Elmer 公司生产的 Lambda-900 型分光光度计测量薄膜的透射率曲线,采用日本 Olympus 公司生产的 USPM-RU 型反射率测定仪测量薄膜的反射率曲线。根据测得的薄膜透射率或反射率,通过光度法反演计算得到折射率、消光系数和薄膜厚度,反演时光学常数采用 Sellmeier 模型拟合<sup>[19]</sup>。折射率和消光系数可表示为

$$n(\lambda) = \sqrt{A_0 + \frac{A_1\lambda^2}{\lambda^2 - A_2} + \frac{A_3\lambda^2}{\lambda^2 - A_4}}, \quad (1)$$

$$k(\lambda) = n(\lambda) / (B_0 + B_1\lambda + B_2\lambda^2), \quad (2)$$

式中  $n(\lambda)$  和  $k(\lambda)$  分别为不同波长  $\lambda$  对应的折射率和消光系数,  $A_0, A_1, A_2, A_3, A_4$  以及  $B_0, B_1, B_2$  为拟合计算所得的参数。

以 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜为例,图 2 所示为不同辅助离子源电压值下制备的 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜的透射率曲线,其中 SIBS 表示单离子束溅射。可以看出,薄膜的短波透射光谱峰值略低于基板的,这说明薄膜有一定的吸收,透射率曲线的峰值与基板透射率曲线峰值越接近,薄膜的吸收率就越小。随着辅助离子束电压的增加,透射率曲线向短波方向移动,说明薄膜的厚度逐渐减小。

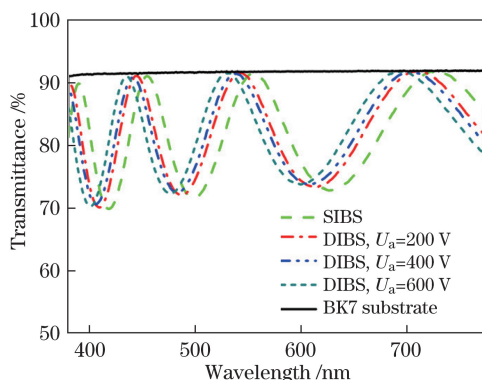


图 2 不同辅助离子源电压下制备的 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 薄膜的透射率曲线

Fig. 2 Transmission curves of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films prepared under different assisted ion source voltages

由测得的薄膜厚度可计算得出沉积的平均速率,从实验结果可知,平均沉积速率随着  $U_a$  的增大而减小。在 SIBS 条件下,  $Ta_2O_5$  薄膜的平均沉积速率为 0.109 nm/s,在离子辅助即 DIBS 情况下,当  $I_a=100$  mA 时,随着  $U_a$  的增大,平均沉积速率由 0.108 nm/s 降低至 0.105 nm/s。对于  $Nb_2O_5$  薄膜, SIBS 的平均沉积速率为 0.108 nm/s;在离子辅助条件下,随着  $U_a$  从 200 V 增加到 800 V,平均沉积速率由 0.106 nm/s 减小至 0.102 nm/s;  $SiO_2$  薄膜的平均沉积速率比前两种材料的略低, SIBS 平均沉积速率为 0.102 nm/s,在离子辅助条件下,随着  $U_a$  由 200 V 增加到 600 V,平均沉积速率由 0.096 nm/s 减小至 0.084 nm/s。在沉积过程中,辅助源的离子束会使薄膜表面产生重溅射,薄膜表面被刻蚀,厚度也变小。

图 3 所示为波长为 550 nm 时,以 EBE、IBAD 和 IBS 三种方式制备的不同薄膜的光学常数。EBE 制备的  $Nb_2O_5$  薄膜,  $n=2.247, k=1.27 \times 10^{-3}$ 。IBAD 制备的薄膜,  $n=2.369, k=3.4 \times 10^{-4}$ 。在没有离子辅助的情况下,离子束溅射制备的  $Nb_2O_5$  薄膜,  $n=2.283$ ,且薄膜具有一定的吸收率,  $k=1.96 \times 10^{-3}$ 。在离子辅助条件下,随着  $U_a$  的增大,  $n$  呈现先增大后减小的趋势,当  $U_a=200$  V 时,  $n=2.306$ ,当  $U_a=800$  V 时,  $n$  有最小值,为 2.276;随着  $U_a$  的增大,  $k$  逐渐减小,当  $U_a=600$  V 时,  $k$  达到了最小值,此时  $k < 1.0 \times 10^{-4}$ ,薄膜的吸收基本可忽略,但当  $U_a=800$  V 时,吸收率略微增大。

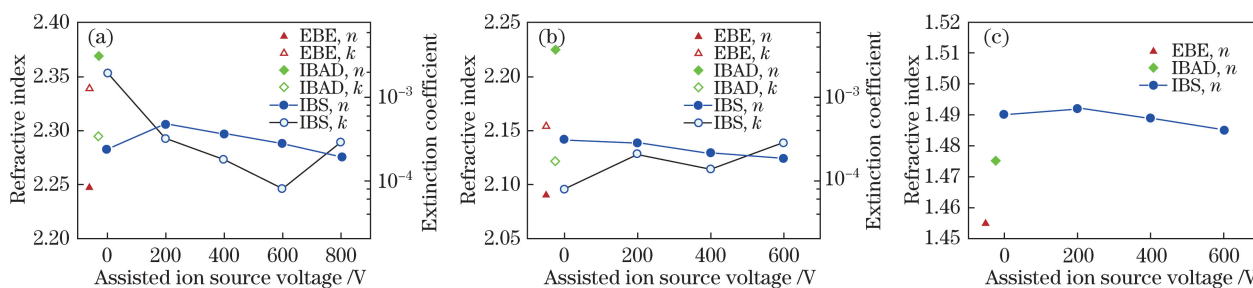


图 3 波长为 550 nm 时,以 EBE、IBAD 和 IBS 三种方式制备的不同薄膜的光学常数。(a)  $Nb_2O_5$ ; (b)  $Ta_2O_5$ ; (c)  $SiO_2$   
Fig. 3 Optical constants of different thin films prepared by different methods of EBE, IBAD and IBS when wavelength is 550 nm.  
(a)  $Nb_2O_5$ ; (b)  $Ta_2O_5$ ; (c)  $SiO_2$

EBE 制备的  $Ta_2O_5$  薄膜,  $n=2.091, k=4.5 \times 10^{-4}$ 。IBAD 制备的薄膜则有更大的折射率和更小的吸收率,  $n=2.225, k=1.7 \times 10^{-4}$ 。在没有离子辅助的情况下, IBS 制备的  $Ta_2O_5$  薄膜,  $n=2.142$ ,且薄膜已经具有较小的吸收率,  $k < 1 \times 10^{-4}$ 。在离子辅助的情况下,随着  $U_a$  的增大,  $n$  由 2.139 减小至 2.125,  $k$  的变化范围为  $1.4 \times 10^{-4} \sim 2.9 \times 10^{-4}$ 。

EBE 制备的  $SiO_2$  薄膜,  $n=1.455$ ; IBAD 制备的  $SiO_2$  薄膜,  $n=1.475$ 。IBS 制备的  $SiO_2$  薄膜折射率比 EBE 和 IBAD 制备的高,且随着  $U_a$  的增大,  $n$  有略微变化,范围为 1.485~1.492,消光系数很小,可以忽略。

薄膜折射率在一定程度上与材料的聚集密度有关<sup>[20]</sup>,同时也会受到材料结构和化学计量比的影响。IBS 和 IBAD 制备的薄膜折射率明显高于 EBE 制备的,可反映出 IBS 和 IBAD 制备的薄膜具有更大的聚集密度。辅助源的氧离子束流可以促进薄膜的氧化,使吸收率减小。  $U_a$  增大,即离子束能量增大,氧离子的注入效应增强,这促进了薄膜的氧化,从而使吸收率变小。而随着离子束能量的进一步增大,氧原子被优先溅射出来,这使薄膜中氧原子的含量减小,故薄膜的吸收率变大。

### 3.2 力学特性

#### 3.2.1 应力

采用美国 Zygo 公司生产的 GPI-HS 型激光干涉仪分别测量镀膜前、后基板的曲率半径,计算出曲率半径的改变量,并由 Stoney 公式计算得出薄膜的应力<sup>[21]</sup>。Stoney 公式可表示为

$$\sigma = \frac{E_s t_s^2}{6(1-\nu_s) t_f} \left( \frac{1}{R_d} - \frac{1}{R_0} \right), \quad (3)$$

式中  $\sigma$  为薄膜的应力,  $\nu_s$  为基板的泊松比,  $E_s$  为基底杨氏模量,  $t_s$  和  $t_f$  分别为基板和薄膜的厚度,  $R_0$  和  $R_d$  分别为镀膜前、后基板的曲率半径。实验所用基板为 BK7 玻璃。应力值为正时表示应力为张应力,为负时表示应力为压应力,实验结果中讨论应力大小时均指其绝对值。

以 EBE、IBAD 和 IBS 三种沉积方式制备的不同薄膜的应力值如图 4 所示,可以看出,所有样品的应力

均为负值,呈现为压应力。IBAD 和 IBS 制备的薄膜应力都要明显高大于 EBE 制备的,EBE 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜应力为  $-78\text{ MPa}$ ,IBAD 制备的薄膜应力为  $-216\text{ MPa}$ 。没有离子辅助时,IBS 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜应力为  $-271\text{ MPa}$ ;在离子辅助下,应力值随着  $U_a$  的变化而变化,当  $U_a=200\text{ V}$  时,应力为  $-281\text{ MPa}$ ,当  $U_a$  大于  $200\text{ V}$  时,应力随着  $U_a$  的增大而逐渐减小,当  $U_a=800\text{ V}$  时,应力出现最小值,为  $-152\text{ MPa}$ 。

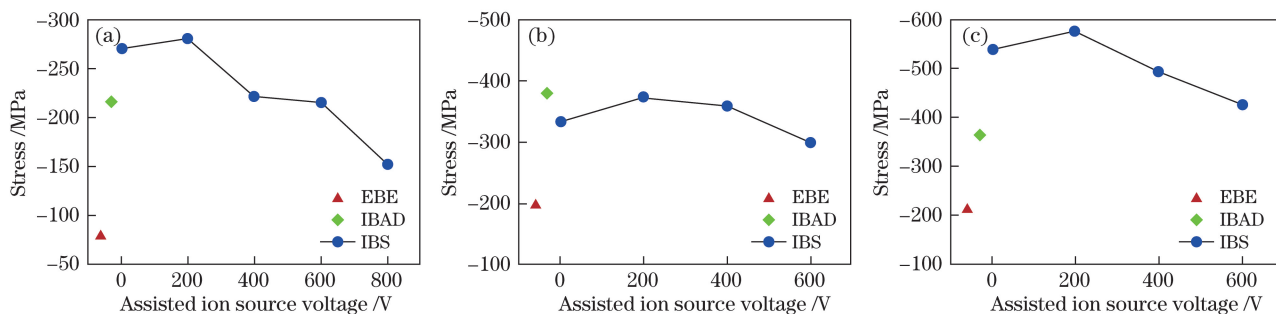


图 4 以 EBE、IBAD 和 IBS 三种沉积方式制备的不同薄膜的应力值。(a)  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ; (b)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ; (c)  $\text{SiO}_2$

Fig. 4 Stress value of different thin films prepared by three deposition methods of EBE, IBAD and IBS.

(a)  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ; (b)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ; (c)  $\text{SiO}_2$

EBE 和 IBAD 沉积的  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜应力分别为  $-195\text{ MPa}$  和  $-384\text{ MPa}$ 。SIBS 制备的  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜应力为  $-334\text{ MPa}$ ;在离子辅助条件下,其应力变化趋势类似于  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜的,当  $U_a=200\text{ V}$  时,应力为  $-373\text{ MPa}$ ,当  $U_a=600\text{ V}$  时,应力减小至  $-299\text{ MPa}$ 。

EBE 和 IBAD 制备的  $\text{SiO}_2$  薄膜应力分别为  $-211\text{ MPa}$  和  $-366\text{ MPa}$ 。IBS 制备的  $\text{SiO}_2$  应力值高于 EBE 和 IBAD 的,当  $U_a$  从  $0$  增大至  $600\text{ V}$  时,应力值依次为  $-539, -577, -495, -427\text{ MPa}$ 。

IBS 和 IBAD 制备的薄膜更加致密,应力值要明显大于 EBE 制备的薄膜的,这与折射率的变化一致。辅助源对应力有一定的调节作用,随着辅助源电压的增大,薄膜应力呈现先增大后减小的趋势。辅助离子源的离子束轰击薄膜表面时,离子能够以一定的深度注入薄膜表面,并使得薄膜表面下一定深度的原子处于亚稳态。当离子能量较小时,薄膜表面下的原子具有较小的迁移率,并将能量传递给下面的原子,使薄膜产生聚集效应,从而产生压应力。当离子束能量逐渐增大时,处于亚稳态的原子具有较大的迁移率,会从薄膜表面逸出,从而使应力释放<sup>[22-23]</sup>。

### 3.2.2 硬度和杨氏模量

采用美国 Agilent 公司生产的 G200 型纳米压痕仪测试样品的载荷-位移曲线,并通过 Oliver-Pharr 方法<sup>[24-25]</sup> 计算获得薄膜的硬度( $H$ )和杨氏模量( $E$ )。

以 EBE、IBAD 和 IBS 三种沉积方式制备的不同薄膜的硬度如图 5 所示,杨氏模量如图 6 所示。EBE 制备  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜, $H=3.3\text{ GPa}$ , $E=77.1\text{ GPa}$ 。IBAD 制备的薄膜, $H=4.8\text{ GPa}$ , $E=110.1\text{ GPa}$ ,比 EBE 制备的高。IBS 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜,在没有离子辅助时, $H=7.0\text{ GPa}$ , $E=137.5\text{ GPa}$ ;在离子辅助下, $H$  与  $E$  随着  $U_a$  的变化而变化, $H$  的变化范围为  $7.0\sim 7.7\text{ GPa}$ , $E$  的变化范围为  $130.9\sim 138.1\text{ GPa}$ 。

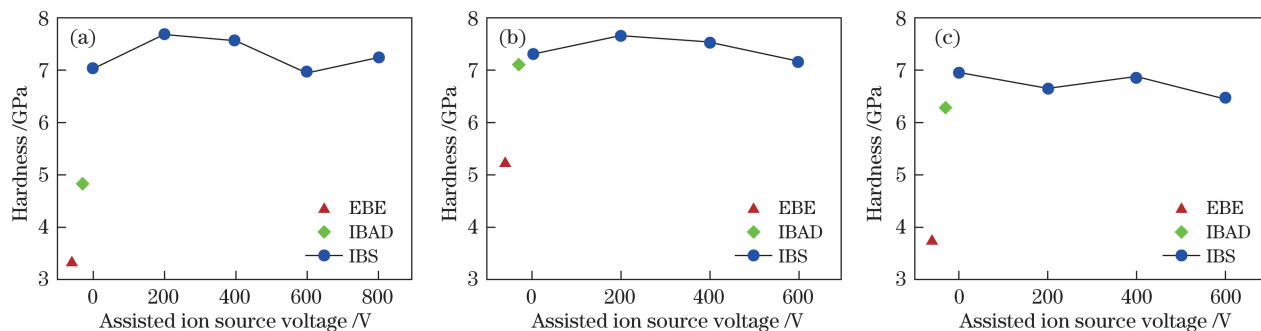


图 5 以 EBE、IBAD 和 IBS 三种沉积方式制备的不同薄膜的硬度。(a)  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ; (b)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ; (c)  $\text{SiO}_2$

Fig. 5 Hardness of different thin films prepared by three deposition methods of EBE, IBAD and IBS.

(a)  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ; (b)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ; (c)  $\text{SiO}_2$

EBE 沉积的  $Ta_2O_5$  薄膜,  $H=5.2$  GPa,  $E=116.2$  GPa。而 IBAD 制备的薄膜,  $H=7.1$  GPa,  $E=151.6$  GPa。在离子辅助条件下, IBS 制备的  $Ta_2O_5$  薄膜,  $H$  和  $E$  的变化趋势类似于  $Nb_2O_5$  薄膜的,  $H$  的变化范围为  $7.2\sim 7.7$  GPa,  $E$  的变化范围为  $138.3\sim 144.9$  GPa。

EBE 制备的  $SiO_2$  薄膜,  $H=3.7$  GPa 和  $E=42.4$  GPa。IBAD 制备的  $SiO_2$  薄膜,  $H=6.3$  GPa,  $E=74.2$  GPa。IBS 制备的  $SiO_2$  薄膜,  $H$  的变化范围为  $6.5\sim 7.0$  GPa,  $E$  的变化范围为  $77.1\sim 81.1$  GPa。

硬度和杨氏模量与薄膜的材料和结构有关,从以上实验结果可知,IBS 制备的薄膜更致密,具有较大的硬度和杨氏模量,同时,IBS 和 IBAD 制备的薄膜硬度和杨氏模量明显大于 EBE 制备的。离子辅助对 IBS 制备的薄膜硬度和杨氏模量的影响相对较小。

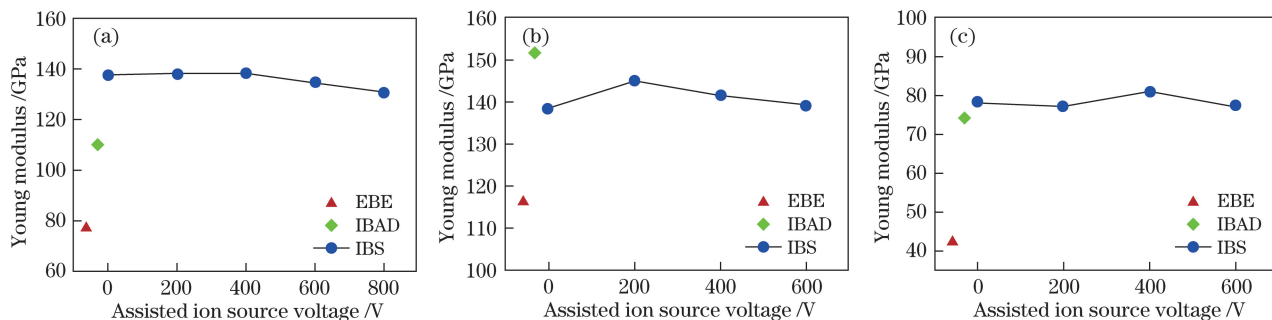


图 6 以 EBE、IBAD 和 IBS 三种沉积方式制备的不同薄膜的杨氏模量。(a)  $Nb_2O_5$ ; (b)  $Ta_2O_5$ ; (c)  $SiO_2$   
 Fig. 6 Young modulus of different thin films prepared by three deposition methods of EBE, IBAD and IBS.  
 (a)  $Nb_2O_5$ ; (b)  $Ta_2O_5$ ; (c)  $SiO_2$

### 3.3 微结构

薄膜的微结构会直接影响其光学特性,因此对 EBE、IBAD 和 IBS 三种方法沉积的薄膜微结构进行了测试和分析。X 射线衍射结果显示,IBS、IBAD 以及 EBE 制备的薄膜样品均为无定形结构。

薄膜的表面形貌是光学薄膜的重要特性之一,粗糙的表面会增强薄膜表面的散射,从而导致光学损耗。采用美国 Veeco 公司的生产的 Nanoscope Multimode IV 型原子力显微镜测量样品的表面形貌。实验中样品的基板为 Si。

图 7 所示为以 EBE、IBAD、SIBS 和 DIBS 方式制备的  $Ta_2O_5$  薄膜表面形貌,可以看出,EBE 制备的薄膜表面粗糙度较大,均方根粗糙度( $X_{RMS}$ )为  $0.978$  nm。IBAD 制备的  $Ta_2O_5$  薄膜,  $X_{RMS}=0.278$  nm。IBS 制备的  $Ta_2O_5$  薄膜的表面形貌明显好于前两种薄膜的, SIBS 制备的薄膜,  $X_{RMS}=0.190$  nm; DIBS 制备的薄膜表面形貌得到一定程度的改善,当  $U_a=200$  V 时,  $X_{RMS}=0.155$  nm。

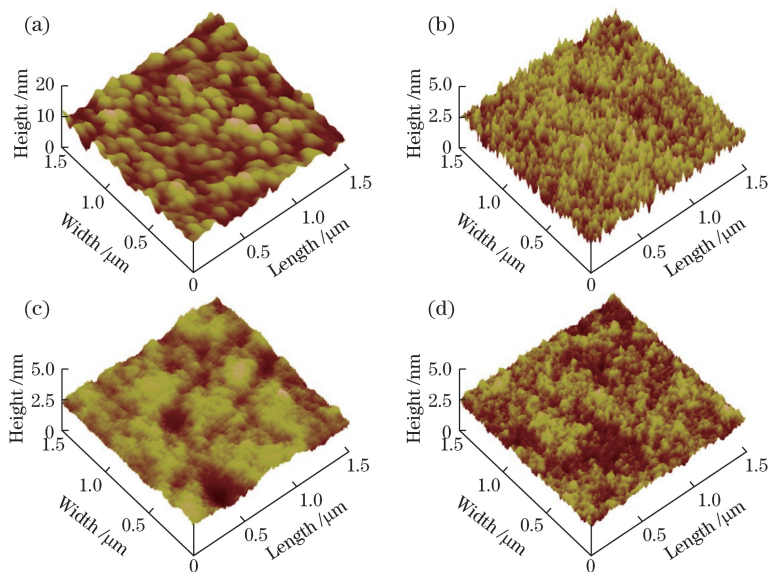


图 7 以(a)EBE、(b)IBAD、(c)SIBS 和(d)DIBS 方式制备的  $Ta_2O_5$  薄膜表面形貌  
 Fig. 7 Surface morphologies of  $Ta_2O_5$  thin films prepared by (a) EBE, (b) IBAD, (c) SIBS and (d) DIBS

EBE 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜,  $X_{\text{RMS}}=0.992$  nm。IBAD 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜,  $X_{\text{RMS}}=0.199$  nm。SIBS 制备的薄膜,  $X_{\text{RMS}}=0.191$  nm; 辅助离子源对薄膜表面的粗糙度有较明显的改善作用, DIBS 制备的薄膜表面粗糙度进一步减小, 当  $U_a=600$  V 时,  $X_{\text{RMS}}=0.147$  nm。

EBE 制备的  $\text{SiO}_2$  薄膜,  $X_{\text{RMS}}=1.413$  nm。IBAD 制备的  $\text{SiO}_2$  薄膜,  $X_{\text{RMS}}=0.284$  nm。与  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜的实验结果类似, IBS 制备的样品表面形貌明显好于 EBE 和 IBAD 制备的, SIBS 制备的  $\text{SiO}_2$  薄膜,  $X_{\text{RMS}}=0.201$  nm; 离子束辅助对表面形貌有改善作用, 当  $U_a=200$  V 时,  $X_{\text{RMS}}$  的值为 0.174 nm。

采用德国 Zeiss 公司生产的 Ultra 55 型扫描电子显微镜观测样品截面形貌。图 8 所示为以 EBE、IBAD 和 DIBS 方式制备的  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜截面形貌, 此时  $U_a=400$  V, 放大倍率均为  $10^5$ 。可以看出, EBE 制备的膜层存在柱状结构, 而 IBAD 和 DIBS 制备的膜层致密, 截面平整, 明显优于 EBE 制备的。 $\text{Nb}_2\text{O}_5$  和  $\text{SiO}_2$  样品也有类似的测试结果。

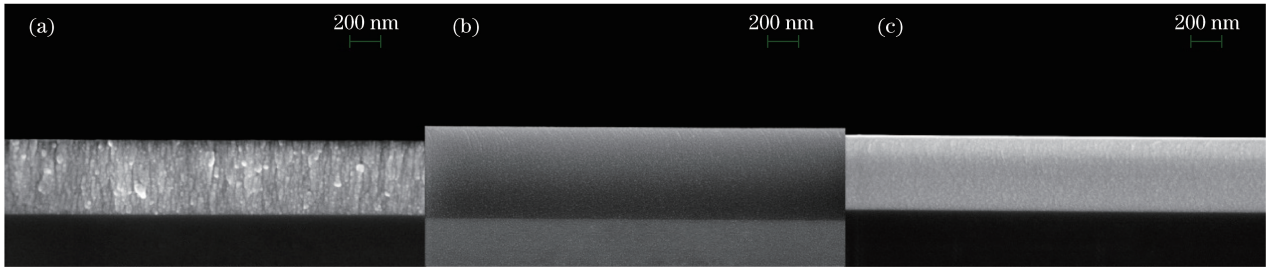


图 8 以(a)EBE、(b)IBAD 和(c)DIBS 方式制备的  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜截面形貌

Fig. 8 Cross-sectional morphologies of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  thin films prepared by (a) EBE, (b) IBAD and (c) DIBS

## 4 总 结

研究了 IBS 制备的  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$  和  $\text{SiO}_2$  薄膜的光学特性、力学特性和微结构特性, 并与 IBAD 和 EBE 制备的样品进行了对比, 结果表明, IBS 和 IBAD 制备的薄膜性能明显优于 EBE 制备的。在合适的工艺条件下, IBS 制备的薄膜有更小的吸收率、更好的表面形貌、更大的硬度和杨氏模量。IBS 制备的薄膜均方根粗糙度小于 0.2 nm, 在合适的辅助离子源电压下, 可以获得更小的表面粗糙度。离子辅助在一定程度上可以改变薄膜应力, 但对硬度和杨氏模量的影响相对较小。

## 参 考 文 献

- [1] Klemberg-Sapieha J E, Oberste-Berghaus J, Martinu L, *et al.* Mechanical characteristics of optical coatings prepared by various techniques: A comparative study[J]. *Applied Optics*, 2004, 43(13): 2670-2679.
- [2] Martin P J, Macleod H A, Netterfield R P, *et al.* Ion-beam-assisted deposition of thin films[J]. *Applied Optics*, 1983, 22(1): 178-184.
- [3] Mikhelashvili V, Eisenstein G. Effects of annealing conditions on optical and electrical characteristics of titanium dioxide films deposited by electron beam evaporation[J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, 89(6): 3256-3269.
- [4] McNeil J R, Barron A C, Wilson S R, *et al.* Ion-assisted deposition of optical thin films: Low energy vs high energy bombardment[J]. *Applied Optics*, 1984, 23(4): 552-559.
- [5] Kim K H, Park K C, Ma D Y. Structural, electrical and optical properties of aluminum doped zinc oxide films prepared by radio frequency magnetron sputtering[J]. *Journal of Applied Physics*, 1997, 81(12): 7764-7772.
- [6] Hallbauer A, Huber D, Strauss G, *et al.* Overview about the optical properties and mechanical stress of different dielectric thin films produced by reactive-low-voltage-ion-plating[J]. *Thin Solid Films*, 2008, 516(14): 4587-4592.
- [7] Masse J, Szymanowski H, Zabeida O, *et al.* Stability and effect of annealing on the optical properties of plasma-deposited  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  and  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  films[J]. *Thin Solid Films*, 2006, 515(4): 1674-1682.
- [8] Tabata A, Matsuno N, Suzuoki Y, *et al.* Optical properties and structure of  $\text{SiO}_2$  films prepared by ion-beam sputtering[J]. *Thin Solid Films*, 1996, 289(1/2): 84-89.
- [9] Chao S, Wang W H, Hsu M Y, *et al.* Characteristics of ion-beam-sputtered high-refractive-index  $\text{TiO}_2$ - $\text{SiO}_2$  mixed films[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1999, 16(6): 1477-1483.

- [10] Lee C C, Tien C L, Hsu J C. Internal stress and optical properties of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films deposited by ion-beam sputtering[J]. Applied Optics, 2002, 41(10): 2043-2047.
- [11] Hsu J C, Lee C C. Single- and dual-ion-beam sputter deposition of titanium oxide films[J]. Applied Optics, 1998, 37(7): 1171-1176.
- [12] Çetinorgu E, Baloukas B, Zabeida O, *et al.* Mechanical and thermoelastic characteristics of optical thin films deposited by dual ion beam sputtering[J]. Applied Optics, 2009, 48(23): 4536-4544.
- [13] Liu Huasong, Wang Lishuan, Yang Xiao, *et al.* Energy band properties of hafnium oxide thin films fabricated by ion beam sputtering technique[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(2): 0231001.  
刘华松, 王利栓, 杨霄, 等. 离子束溅射氧化铪薄膜的能带特性[J]. 光学学报, 2017, 37(2): 0231001.
- [14] Li Ding, Xiong Shengming. Mid-infrared properties of oxide coatings prepared by ion beam sputtering deposition[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(1): 0107002.  
李定, 熊胜明. 离子束溅射氧化物薄膜的中红外特性[J], 中国激光, 2015, 42(1): 0107002.
- [15] Yoon S G, Kang S M, Jung W S, *et al.* Effect of assist ion beam voltage on intrinsic stress and optical properties of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films deposited by dual ion beam sputtering[J]. Thin Solid Films, 2008, 516(11): 3582-3585.
- [16] Prins S L, Barron A C, Herrmann W C, *et al.* Effect of stress on performance of dense wavelength division multiplexing filters: Optical properties[J]. Applied Optics, 2004, 43(3): 626-632.
- [17] Harry G M, Abernathy M R, Becerra-Toledo A E, *et al.* Titania-doped tantala/silica coatings for gravitational-wave detection[J]. Classical and Quantum Gravity, 2007, 24(2): 405-415.
- [18] Pinard L, Michel C, Sassolas B, *et al.* Mirrors used in the LIGO interferometers for first detection of gravitational waves[J]. Applied Optics, 2017, 56(4): C11-C15.
- [19] Arndt J, Hummel W. The general refractivity formula applied to densified silicate glasses[J]. Physics and Chemistry of Minerals, 1988, 15(4): 363-369.
- [20] Jerman M, Qiao Z H, Mergel D. Refractive index of thin films of SiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, and HfO<sub>2</sub> as a function of the films' mass density[J]. Applied Optics, 2005, 44(15): 3006-3012.
- [21] Freund L B, Suresh S. Thin film materials: Stress, defect formation and surface evolution[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2009.
- [22] Davis C A. A simple model for the formation of compressive stress in thin films by ion bombardment[J]. Thin Solid Films, 1993, 226(1): 30-34.
- [23] Carter G. Peening in ion-assisted thin-film deposition: A generalized model[J]. Journal of Physics D, 1994, 27(5): 1046-1055.
- [24] Hay J. Measuring substrate-independent modulus of dielectric films by instrumented indentation[J]. Journal of Materials Research, 2009, 24(3): 667-677.
- [25] Oliver W C, Pharr G M. Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology[J]. Journal of Materials Research, 2004, 19(1): 3-20.