离子束溅射宽带吸收薄膜设计与制备技术研究

姜玉刚[1,2*],刘小利[3],刘华松[1,2*],刘丹丹[1,2],王利栓[1,2,4],陈 丹[1,2],姜承慧[1,2],季一勤[1,2,4]

(1. 天津津航技术物理研究所 天津市薄膜光学重点实验室,天津 300308;
2. 光电材料智能表面织构技术联合实验室,天津 300308;
3. 空军驻京津地区军事代表室,天津 300308;
4. 哈尔滨工业大学光电子技术研究所 可调谐激光技术国家级重点实验室,黑龙江 哈尔滨 150080)

摘 要:Si 薄膜在可见光和近红外波段具有一定的吸收特性,可用于宽带吸收薄膜的制备。采用离子束溅射技术,在熔融石英基底上制备了不同沉积工艺参数的 Si 薄膜,基于透、反射光谱和椭偏光谱的全光谱数值拟合法,计算了 Si 薄膜的光学常数,并研究了氧气、氮气流量对其光学特性的影响。选择Si 和 Ta_2O_5 作为高折射率材料、SiO_2 作为低折射率,设计了吸收率为 2%和 10%的宽带(1 000~1 400 nm)吸收薄膜。采用离子束溅射沉积技术,在熔融石英基底上制备了宽带吸收薄膜,对于 A=2%的宽带吸收光谱,在 1 064、1 200、1 319 nm 的吸收率分别为 2.12%、2.15%和 2.22%;对于 A=10%的宽带吸收光谱,在 1 064、1 200、1 319 nm 的吸收率分别为 9.71%、8.35%和 9.07%。研究结果对于吸收测量仪、光谱测试仪等仪器的定标具有重要的作用。

关键词:离子束溅射技术; Si 薄膜; 吸收率; 光学常数
中图分类号:O433.4 **文献标志码**:A **DOI**:10.3788/IRLA201948.0221003

Study on the design and preparing technology of ion beam sputtering wideband absorption thin film

Jiang Yugang[1,2*], Liu Xiaoli[3], Liu Huasong[1,2*], Liu Dandan[1,2], Wang Lishuan[1,2,4], Chen Dan[1,2], Jiang Chenghui[1,2], Ji Yiqin[1,2,4]

(1. Tianjin Key Laboratory of Optical Thin Film, Tianjin Jinhang Institute of Technical Physics, Tianjin 300308, China;
2. Joint Laboratory of Optoelectronic Materials and Intelligent Surface Structures, Tianjin 300308, China;
3. Air Force Agent Office in the Beijing-Tianjin Area, Tianjin 300308, China;
4. National Key Laboratory of Science and Technology on Tunable Laser, Institute of Optical-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China)

Abstract: Si thin film has certain absorption characteristics in visible and near-infrared bands and can be used for preparing broadband absorption film. Si thin films were deposited on fused silica substrate with different deposition process parameters by ion beam sputtering technology. Based on full spectrum numerical fitting methods with the transmission spectra, reflection spectra, and ellipsometry spectra, optical constants of Si thin films were calculated. The effects of oxygen and nitrogen flow rate on optical

收稿日期:2018-09-05; **修订日期**:2018-10-15
基金项目:国家自然科学基金(61705165,61775167,61235011);天津市自然科学基金(18JCZDJC37900)
作者简介:姜玉刚(1985-),男,高级工程师,博士,主要从事于低损耗激光薄膜和固体激光薄膜设计、制备和性能检测技术方面的研究。Email:liuhuasong@hotmail.com

properties were also researched. Choosing Si and Ta_2O_5 thin film as high refractive index materials and SiO_2 thin film as low refractive index material, broadband (1 000-1 400 nm) absorption films with the absorption rate of 2% and 10% were designed. Using ion beam sputtering technique, broadband absorption films were deposited on the fused silica substrates. For broadband absorption film (A=2%), the absorption rate at the wavelength of 1 064, 1 200 and 1 319 nm were respectively 2.12%, 2.15% and 2.22%. For broadband absorption film(A=10%), the absorption rate at the wavelength of 1 064, 1 200 and 1 319 nm were respectively 9.71%, 8.35% and 9.07%. The results are of great importance to the calibration of instrument such as absorption measuring instrument and spectroscopic instrument.

Key words: ion beam sputtering; Si thin film; absorption rate; optical constant

0 引 言

硅作为最重要、应用最广泛的半导体材料,它是制作晶体管、集成电路、电力电子器件和光电子器件的重要基础材料。近年来,a-Si:H 薄膜在太阳能电池、薄膜晶体管、液晶显示和光电探测等领域有着越来越广泛的应用[1-3]。Si 薄膜在研究和应用过程中,折射率和消光系数等光学参数的分析和研究非常重要[4],对其精确测量更为重要。椭圆偏振光谱法(Spectroscopic Ellipsometry,SE)是表征半导体薄膜光学和结构特性的有效手段[5-9],是一种主动的、非破坏性的、无扰动的、非介入测量薄膜厚度和光学性能的方法,具有测量精度高、灵敏度高、方便快捷等特点。目前,Si 薄膜制备方法主要有离子束溅射沉积技术、磁控溅射沉积技术、电子束蒸发沉积技术、等离子增强化学汽相沉积技术等[10-11],但制备的 Si 薄膜在可见光和近红外波段均具有一定的吸收特性,可用于宽带吸收薄膜的制备。

近年来,吸收薄膜研究主要集中在太阳光谱选择性吸收薄膜方向,金属、金属氧化物、金属硫化物和半导体等粒子的电子跃迁能级与可见光谱区的光子能量较为匹配,是制备太阳能选择性薄膜的主要材质。这种吸收薄膜主要是基于金属纳米微粒/电介质复合薄膜与金属基底的光干涉原理制备的,主要应用于太阳能的相关产品中。但对于应该于光学测量方面的全介质的吸收薄膜还鲜有报道。

文中采用离子束溅射技术,在熔融石英基底上制备了不同沉积工艺参数的 Si 薄膜,基于透反射光谱和椭偏光谱的全光谱数值拟合法,计算了 Si 薄膜的光学常数,并研究了氧气、氮气流量对其光学特性的影响。选择 Si 和 Ta_2O_5 作为高折射率材料、SiO_2 作为低折射率,设计和制备了不同吸收率的宽带(1 000~1 400 nm)吸收薄膜,解决了光学薄膜弱吸收测量仪标定的问题。

1 Si 薄膜特性研究

1.1 Si 薄膜的制备

离子束溅射沉积 Si 薄膜工作示意图如图 1 所示。离子束溅射沉积系统中采用了 1 个 16 cm 离子源和 1 个 12 cm 的离子源。16 cm 离子源的束压可以

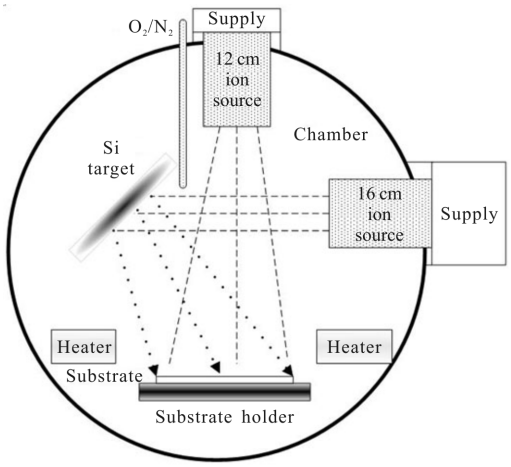

图 1 双离子束溅射沉积系统工作示意图

Fig.1 Scheme of the dual ion beam sputtering system

在 600~1 500 V 间可调,16 cm 离子源的束流可以在 600~1 200 mA 间可调。石英加热灯可以从室温加热到 250°。氮气和氧气可选择通入到 Si 靶表面,氮气纯度大于 99.995%,氧气纯度大于 99.999%,Si 靶的尺寸为 340 mm,纯度为 99.99%。文中研究真空室靶表面不通入气体、通入 2 sccm 的 N_2 和通入 2 sccm

的 O_2 三种工艺参数，采用离子束溅射沉积技术，在熔融石英基底上沉积了 Si 薄膜，沉积时间 545 s，沉积厚度大约 150 nm，具体制备工艺参数如表 1 所示。

表 1 离子束溅射 Si 薄膜的工艺参数

Tab.1 Processing parameters for preparing Si film by ion beam sputtering

Parameters	Si film
Target material	Si
Ion beam voltage/V	1 200
Ion beam current/mA	900
Accelerating voltage/V	450
E/B	150%
Deposition rate/nm·s^{-1}	0.28
Gas flow/sccm	0/2 sccm O_2/2 sccm N_2
Substrate material	Fused silica
Size of substrate/mm	Φ40×6
Temperature of substrate	Room temperature

1.2 Si 薄膜光学常数计算

采用 Lambda900 分光光度计对不同工艺参数的石英基底上 Si 薄膜的可见光-近红外波段透射率曲线进行了测量，测量结果如图 2 所示。

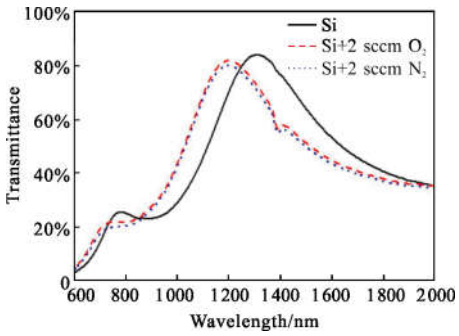

图 2 Si 薄膜透射率曲线

Fig.2 Transmittance curve of Si thin film

采用 WVASE32 软件中的Genosc 模型，很容易去建立包含许多振荡子的拟合模型。基于文中研究主要是 Si 薄膜，在建立可见光-近红外分析模型时，通常选择 Gaussian 摇摆模型 (Genosc) 去拟合，Gaussian 模型可写成公式(1)~(4) 形式：

$$\varepsilon_{n_Gaussian}=\varepsilon_{n1}+i\varepsilon_{n2} \tag{1}$$

$$\varepsilon_{n2}=A'e^{-\left(\frac{E-E_n}{\sigma}\right)^2}-A'e^{-\left(\frac{E+E_n}{\sigma}\right)^2} \tag{2}$$

$$\sigma=\frac{Br_n}{2\sqrt{\ln(2)}} \tag{3}$$

$$\varepsilon_{n1}=\frac{2}{\pi}P\int_0^{\infty}\frac{\xi\varepsilon_{n2}(\xi)}{\xi^2-E^2}\mathrm{d}\xi \tag{4}$$

这里，$1/2\sqrt{\ln(2)}$ 因子可以设置加宽参数 Br_n=FWHM，$A'=A_n/Br_n$。

为了研究不同工艺条件下的 Si 薄膜的光学常数变化情况，基于透射光谱的光谱反演计算方法采用椭偏软件对 Si 薄膜的光学常数进行了拟合计算，拟合结果如图 3 所示，计算的 Si 薄膜折射率曲线和消光系数曲线如图 4 和 5 所示。从图中可以看出，通入 2 sccm 的 O_2 制备的 Si 薄膜折射率和消光系数相对较小，文中在制备宽带吸收薄膜时选择此工艺参数。

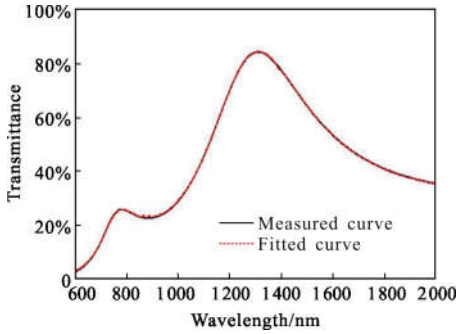

图 3 Si 薄膜透射率测试和拟合曲线

Fig.3 Measured and fitted transmittance curves of Si thin film

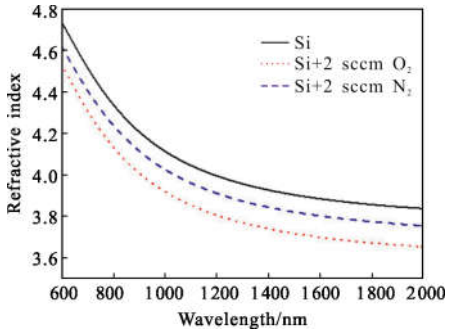

图 4 Si 薄膜折射率曲线

Fig.4 Refractive index curve of Si thin film

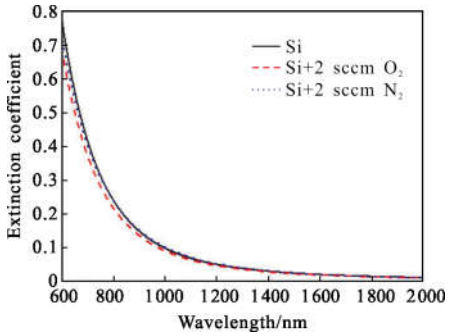

图 5 Si 薄膜消光系数曲线

Fig.5 Extinction coefficient curve of Si thin film

2 Si 薄膜在多层膜中的应用

2.1 宽带吸收薄膜的设计

采用离子束溅射沉积技术，在石英基底上制备了 Ta_2O_5 和 SiO_2 薄膜，其透过率曲线如图 6 所示。基于透射光谱的光谱反演计算方法采用椭偏软件对 Ta_2O_5 和 SiO_2 薄膜的光学常数进行了拟合计算，获得的 Ta_2O_5 和 SiO_2 薄膜折射率曲线如图 7 所示。

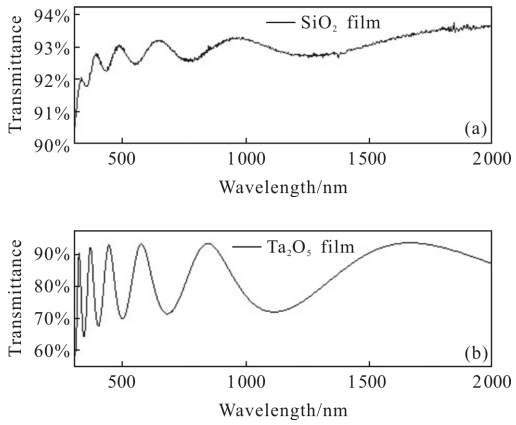

图 6 Ta_2O_5 和 SiO_2 薄膜的透射率曲线

Fig.6 Transmittance curves of Ta_2O_5 and SiO_2 films

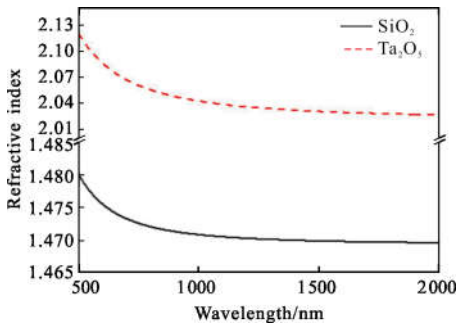

图 7 Ta_2O_5 和 SiO_2 薄膜的折射率曲线

Fig.7 Refractive index curves of Ta_2O_5 and SiO_2 films

将计算的 Ta_2O_5 薄膜、SiO_2 薄膜和 Si 薄膜的光学常数作为设计参数输入到薄膜设计软件中，根据设计要求(1 064、1 200、1 319 nm 的吸收率均为 2%或 10%)，设定宽带吸收薄膜基本膜系结构为 Sub/(HL)^8 (ML)^4 /Air，其中 H 为 Ta_2O_5，L 为 SiO_2，M 为 Si。对于吸收率 A=2%，设定参考波长为 1 175 nm，优化最外 8 层，优化后具体膜系结构为：Sub/(HL)^8 1.02M 1.48L 0.62M 1.36L 0.70M 1.44L 0.65M 0.33L/Air，其透过率、反射率和吸收率理论设计曲线如图 8 所示，在 1 064、1 200、1 319 nm 的透射率分别为 0.19%、0.002%和 0.03%，反射率分别为 97.80%、98.04%和 97.94%，吸收率分别为 2.01%、1.96%和 2.03%。

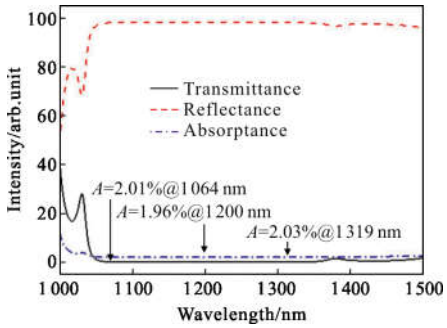

图 8 吸收率 A 为 2%的宽带吸收薄膜的透过率、反射率和吸收率理论曲线

Fig.8 Transmittivity, reflectivity and absorptivity theory curves of broadband absorption film (A=2%)

对于吸收率A=10%，设定参考波长为 1 175 nm，优化后具体膜系结构为：Sub/(HL)^8 (ML)^2 1.27M 0.26LML/Air，其透过率、反射率和吸收率理论设计曲线见图 9，在 1 064、1 200、1 319 nm 的透射率分别为 0.04%、0.004%和 0.12%，反射率分别为 89.96%、90.55%和 89.96%，吸收率分别为 10%、9.44%和 9.92%。

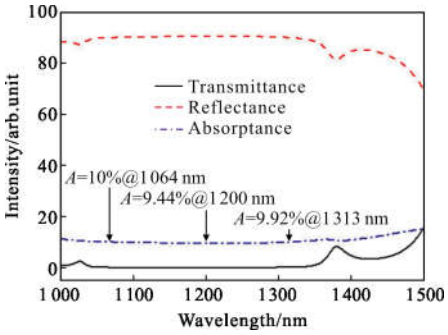

图 9 吸收率 A 为 10%的宽带吸收薄膜的透过率、反射率和吸收率理论曲线

Fig.9 Transmittivity, reflectivity and absorptivity theory curves of broadband absorption film (A=10%)

2.2 宽带吸收薄膜的制备和测试

采用双离子束溅射镀膜机，在熔融石英基底上制备了 A=2%和 A=10%的宽带吸收薄膜。采用 Lambda900 分光光度计测量了熔融石英基底上两种吸收薄膜的透射光谱和反射光谱，如图 10 和 11 所示。通过 A=1−T−R，对于 A=2%的宽带吸收光谱，在 1 064、1 200、1 319 nm 的透射率分别为 0.04%、0.04%

和 0.32%,反射率分别为 97.84%、97.91%和 97.46%,吸收率分别为 2.12%、2.15%和 2.22%;对于 A=10%的宽带吸收光谱,在 1 064、1 200、1 319 nm 的透射率分别为 0.06%、0.15%和 1.97%,反射率分别为 90.23%、91.60%和 88.96%,吸收率分别为 9.71%、8.35%和 9.07%。

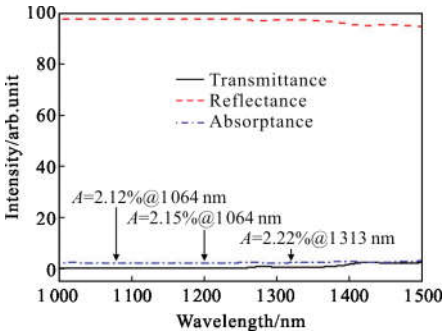

图 10 A 为 2%的宽带吸收薄膜的透过率、反射率和吸收率测试曲线

Fig.10 Measured curves of transmittivity, reflectivity and absorptivity of broadband absorption film (A=2%)

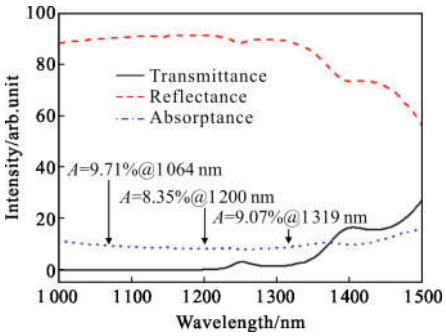

图 11 A 为 10%的宽带吸收薄膜的透过率、反射率和吸收率测试曲线

Fig.11 Measured curves of transmittivity, reflectivity and absorptivity of broadband absorption film (A=10%)

3 结 论

文中采用离子束溅射技术,在熔融石英基底上制备了不同沉积工艺参数的 Si 薄膜,通入 2 sccm 的 O_2 制备的 Si 薄膜折射率和消光系数相对较小,为制备宽带吸收薄膜的工艺参数。选择 Si 和 Ta_2O_5 作为高折射率材料、SiO_2 作为低折射率,采用离子束溅射沉积技术,在熔融石英基底上制备了宽带吸收薄膜,对于 A=2%的宽带吸收光谱,在1 064、1 200、1 319 nm 的吸收率分别为 2.12%、2.15%和 2.22%;对于 A=10%的宽带吸收光谱,在 1 064、1 200、1 319 nm 的吸收率分别为 9.71%、8.35%和 9.07%。实验结果表明,采用离子束溅射沉积技术,可以实现不同吸收率的宽带吸收薄膜的制备。研究结果对于吸收测量仪、光谱测试仪等仪器的定标具有重要的作用。

参考文献:

[1] Lossek K A, Krause C, Arguirov T, et al. Characterization of thin-film a-Si:H/μc-Si:H tandem solar cells on glass substrates [J]. ***Crystal Research and Technology***, 2013, 4(5): 279-286.

[2] Qiang L, Yao R H. Analysis of temperature effect on a-Si:H thin film transistors [J]. ***Solid-State Electronics***, 2013, 81(3): 13-18.

[3] Zhang Jinzhong, Zhang Wenyu, Xie Zhenyu, et al. Growth and optimization of hydrogenated amorphous Si films for thin film transistor fabrication [J]. ***Chinese Journal of Vacuum Science and Technology***, 2012, 32(11): 991-995. (in Chinese)

[4] Li Zhi, Li Wei, Cai Haihong, et al. Effects of low argon dilution ratio on the nanocrystallization and properties of a-Si:H thin films [J]. ***Journal of Nanoscience and Nanotechnology***, 2010, 10(11): 7667-7670.

[5] Cui Min, Deng Jinxiang, Li Ting, et al. Study on preparation and spectroscopic ellipsometry of a-Si:H thin films [J]. ***Vacuum***, 2014, 51(2): 48-51. (in Chinese)

[6] Li Xinli, Gu Jinhua, Gao Haibo. Real time and ex situ spectroscopic ellipsometry analysis microcrystalline silicon thin films growth [J]. ***Acta Physica Sinica***, 2012, 61(3): 036802. (in Chinese)

[7] Liu Huasong, Yang Xiao, Liu Dandan, et al. Physical model of optical contants of SiO_2 thin films[J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2017, 46(9): 0921003. (in Chinese)

[8] Mendeleyev V Ya, Skovorodko S N, Lubnin E N, et al. Optical constants of silicon in near infrared region [J]. ***Applied Physics Letters***, 2008, 93(13): 2994669.

[9] Wang Lishuan, Yang Xiao, Liu Dandan, et al. Annealing effect of the optical properties of tantalum oxide thin film prepared by ion beam sputtering [J]. ***Infrared and Laser Engineering***, 2018, 47(3): 0321004. (in Chinese)

[10] Netrvalova M, Prusakova L, Mullerova J, et al. Optical properties of amorphous hydrogenated and microcrystalline silicon films prepared by plasma enhanced chemical vapor deposition and re-crystallized at moderate temperatures [J]. ***Phys Status Solidi C***, 2011, 8(9): 2680-2683.

[11] Herth E, Desré H, Algré E, et al. Investigation of optical and chemical bond properties of hydrogenated amorphous silicon nitride for optoelectronics applications [J]. ***Microelectronics Reliability***, 2012, 52(1): 141-146.