第 28 卷 第 12 期 2008 年 12 月 光学学报 ACTA OPTICA SINICA Vol. 28, No. 12 December, 2008

文章编号: 0253-2239(2008)12-2431-05

4H-SiC 基底 Al₂O₃ /SiO₂ 双层减反射膜的 设计和制备

黄火林¹ 张 峰¹ 吴正云¹ 齐红基² 姚建可² 范正修² 邵建达²

(1 厦门大学物理系,福建 厦门 361005;² 中国科学院上海光学精密机械研究所,上海 201800)

摘要 在 4H-SiC 基底上设计并制备了 Al₂O₃/SiO₂ 紫外双层减反射膜,通过扫描电镜(SEM)和实测反射率谱来验证理论设计的正确性。利用编程计算得到 Al₂O₃和 SiO₂ 的最优物理膜厚分别为 42.0 nm 和 96.1 nm 以及参考波长 = 280 nm 处最小反射率为 0.09%。由误差分析可知,实际镀膜时保持双层膜厚度之和与理论值一致有利于降低膜系反射率。实验中应当准确控制 SiO₂ 折射率并使 Al₂O₃ 折射率接近 1.715。用电子束蒸发法在 4H-SiC 基底上淀积 Al₂O₃/SiO₂ 双层膜,厚度分别为 42 nm 和 96 nm。SEM 截面图表明淀积的薄膜和基底间具有较强的附着力。实测反射率极小值为 0.33%,对应 = 276 nm,与理论结果吻合较好。与传统 SiO₂ 单层膜相比,Al₂O₃/SiO₂ 双层膜具有反射率小,波长选择性好等优点,从而论证了其在 4H-SiC 基紫外光电器件减反射膜上具有较好的应用前景。

关键词 薄膜光学; Al₂O₃/SiO₂ 双层减反射膜; 电子束蒸发; 4H-SiC基底; 折射率 中图分类号 O484.41 **文献标识码** A doi: 10.3788/AOS20082812.2431

Design and Fabrication of Al₂O₃/SiO₂ Double-Layer Antireflection Coatings on 4H-SiC Substrate

Huang Huolin¹ Zhang Feng¹ Wu Zhengyun¹ Qi Hongji² Yao Jianke² Fan Zhengxiu² Shao Jianda²

¹ Department of Physics, Xiamen University, Xiamen, Fujian 361005, China

² Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract Al_2O_3/SiO_2 double-layer UV antireflection coatings were designed and fabricated on 4H-SiC substrate, and the validity of theoretical design was further verified by scanning electron microscope (SEM) and reflection spectrum. The optimal physical thickness of Al_2O_3 and SiO_2 is 42.0 nm and 96.1 nm respectively by programming calculation. And then the minimum reflectance of 0.09% is obtained at reference wavelength = 280 nm. According to error analysis, keeping the sum of double-layer thickness consistent with theoretical value is helpful to reduce the reflectance. In addition, the refractive index of SiO_2 should more accurate and the refractive index of Al_2O_3 should be controlled close to 1.715 in the experiment. Al_2O_3/SiO_2 double-layer coatings were deposited on 4H-SiC substrate by electron beam evaporation and the physical thickness is 42 nm and 96 nm respectively. SEM images show that the deposited layers and the substrate perform good adhesion to each other. The practical minimum reflectance is 0.33% at = 276 nm which is close to theoretical value. Compared with conventional SiO₂ single layer, Al_2O_3/SiO_2 doublelayer coatings show low reflectance and better wavelength selectivity. These results make the possibility for 4H-SiC based UV optoelectronic devices with Al_2O_3/SiO_2 films as antireflection coatings.

Key words thin film optics; Al_2O_3/SiO_2 double-layer anti-reflection coatings; electron beam evaporation; 4HSiC substrate; refractive index

收稿日期: 2008-01-28; 收到修改稿日期: 2008-05-21

作者简介: 黄火林(1982-),男,博士研究生,主要从事宽禁带半导体材料与光电器件等方面的研究。

E-mail: hhl02078011 @126.com

导师简介:吴正云(1957-),男,教授,博士生导师,主要从事纳米低维半导体材料及光电器件等方面的研究。 E-mail:zhywu@xmu.edu.cn

1 引 言

2432

碳化硅(SiC)作为第三代半导体材料,具有宽禁带、高临界击穿电场、高热导率等优点,适合制作光电器件和功率器件,在紫外光电探测器方面已成为 当前研究的热点^[1,2]。

SiC紫外探测器面临一些问题,其中包括紫外 光在 SiC表面反射较严重,量子效率下降。为了提 高量子效率,在器件光敏面上制作减反射膜是有效 的方法^[3,4]。在光敏面上热氧化生长 SiO₂ 单层膜, 使器件减反效果得到了较大提高^[5,6]。但 SiO₂ 单层 膜存在以下问题:1)抗辐射性能和抗离子沾污能力 较差;2)由于热氧化生长速度非线性,SiO₂ 的厚度 和折射率不易控制,导致仍然有大于3%的反射率 (在 = 280 nm 处)^[7]。另外,在SiC表面生长 Si₃N₄ 单层膜或 Si₃N₄/SiO₂ 双层膜,但主要集中研究其对 器件的钝化保护作用和抑制暗电流方面^[8,9],由于 其折射率与基底 SiC 不完全匹配,同样无法达到理 想减反射效果。

4 H-SiC(SiC 的一种同质多形体)紫外探测器响 应峰值波长位于 280 nm 附近^[1,2,6],因此本文设计 中采用 = 280 nm 作为参考波长。从薄膜的透明 度,折射率的匹配,化学稳定性以及附着力等方面综 合比较 ,Al₂O₃ 和 SiO₂ 是紫外光电器件减反射膜的 最佳选择^[10,11]。</sup>

本文对 Al₂O₃/SiO₂ 双层减反膜进行优化设 计,并讨论分析薄膜折射率和厚度变化对减反射效 果的影响,最后实验结果证明该结构取得了良好的 减反射效果,与理论设计吻合较好。

2 理论优化设计

设计目的是选择性能更佳的薄膜材料使之在 = 280 nm处有最小的反射率和更优的波长选择 性。图 1 为设计的双层膜结构示意图。



图 1 双层膜结构示意图

Fig. 1 Schematic of double-layer coatings 设光线垂直入射,对于消光系数很小的双层透 明薄膜反射率可以表达成如下形式^[12]:

 $R = \frac{\stackrel{2}{n} + \stackrel{2}{n} + \frac{2}{n} + \frac{2}{n}$

$$r_1 = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1}; r_2 = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}; r_3 = \frac{n_2 - n_3}{n_2 + n_3}; = \frac{2 n_1 d_1}{n_2 + n_3}; = \frac{2 n_2 d_2}{n_2 + n_3};$$

采用电子束蒸发法生长 Al₂O₃/SiO₂ 双层膜, 设计时薄膜光学参量选择如下^[13~16]: $n_0 = 1$ (air), $n_1 = 1.675$ (Al₂O₃), $n_2 = 1.454$ (SiO₂), $n_3 = 2.995$ (4H-SiC), = 280 nm。则上述反射率 *R* 的表达式 是一个关于变量 d_1 (Al₂O₃ 的物理厚度)、 d_2 (SiO₂ 的 物理厚度)的数值问题。通过穷极法编程易求出当 *R* 最小时 d_1 、 d_2 的解组合。考虑到薄膜自身对入射光 的吸收作用,选取较小的厚度组合: $d_1 = 42.0$ nm, $d_2 = 96.1$ nm作为双层膜理论设计厚度,此时可得 到理论最小反射率 $R_{min} = 0.09$ %。

3 分 析

在实际镀膜过程中,真空度、基底温度和淀积速 率等实验条件对薄膜的光学参量影响较大,可能导 致实验结果背离理论设计值。为了减小结果误差, 对薄膜制备时的膜厚误差和折射率等参量误差对光 学性能的影响展开讨论有实际意义^[17,18]。

3.1 膜厚误差对反射率的影响

图 2(a) 两个横轴分别表示 Al₂O₃ 物理厚度 d_1 和 SiO₂ 物理厚度 d_2 ,标识" + "处为理论设计厚度 ($d_1 = 42.0 \text{ nm}$, $d_2 = 96.1 \text{ nm}$)。从图中可以看出, 薄膜物理厚度与理论设计值发生偏差时,膜系反射 率明显增加。其中 SiO₂ 膜厚对反射率的影响要略 大于 Al₂O₃。Al₂O₃ 厚度加减 2 nm 时,反射率分别 增至 0.29 %和 0.28 %;而当 SiO₂ 厚度加减 2 nm 时,反射率分别增至 0.31 %和 0.35 %。所以如需控 制膜系反射率小于 0.30 %,实际镀膜时,膜厚精度 应控制在 ± 2 nm 以内。

膜厚 d₁、d₂ 同时变化对膜系反射率的影响如 图 2(b)所示。中间黑色区域为反射率小于 0.10%的 双层膜厚度选择范围,中心标"+"的O点是理论计算 最小反射率 R = 0.09%所在点,对应 $d_1 = 42.0$ nm, d2 = 96.1 nm。外围两个区域分别对应 0.10% R 0.15%和0.15% R 0.30%时双层膜厚度可 选范围。从图中可以看出,反射率小于 0.30%的区

域是个狭长的带状,取"+"为标识的 A、B、C、D 四

点,分别对应的膜厚组合如表1。从表1可知,各点 对应的厚度和与O点对应的最佳厚度和基本一致。 实际镀膜过程中,即使各层膜厚发生偏差,但只要保 证 Al₂O₃ 和 SiO₂ 的物理厚度总和与理论设计值基 本一致,就能保证很小的表面反射率。



= 280 nm 处的反射率随 Al₂O₃ 物理膜厚 d₁ 或 SiO₂ 物理膜厚 d₂ 的变化 (a), Al₂O₃ 物理膜厚 d₁ 和 SiO₂ 物理膜 图 2 厚 d₂(b)的变化

Fig. 2 Reflectance at = 280 nm as a function of Al₂O₃ physical thickness d_1 or SiO₂ physical thickness d_2 (a) , Al₂O₃

physical thickness d_1 and SiO₂ physical thickness d_2 (b) 表 1 R 0.30%时对应 Al₂O₃ 与 SiO₂ 的膜厚

Table 1	Thickness of	$Al_2O_3\\$	and SiC	D ₂ with	R	0.30 %
		٨	в	C	п	0

	A	Б	U	D	0
Al ₂ O ₃ d_1/nm	31.8	37.6	44.4	50.8	42.0
$SiO_2 d_2/nm$	107.1	100.8	93.4	86.6	96.1
Thickness sum d / nm	138.9	138.4	137.8	137.4	138.1
<u>R</u> / %	0.24	0.12	0.12	0.23	0.09

3.2 折射率误差对反射率的影响

图 3 两个横轴分别表示 Al₂O₃ 折射率 n 和 SiO₂ 折射率 n_2 ,标识" + "处对应理论计算值 (n_1 = $1.675, n_2 = 1.454$)。SiO₂ 折射率误差对反射率的





Fig. 3 Reflectance at = 280 nm as a function of Al₂O₃ refractive index n_1 or SiO₂ refractive index n_2

影响比 Al2O3 大,实验中应尽量减少其误差。反射 率随 Al₂O₃ 折射率变化的极小值出现在 $n_1 = 1.706$ 处,对应最小反射率 Rmin = 0.04 %,而不是出现在理 论计算值 $n_1 = 1.675$ 处。这点通过另一种求解多层 膜反射率理论——矢量图解法可得到一致的结论。 经过计算得知实验中 Al2O3 折射率最佳值为 1.715,此时膜系反射率可接近零(R = 0.001%)。 考虑到实际电子束蒸发制备减反膜时 ,过高折射率 的 Al₂O₃ 可能导致薄膜透射率下降,本文选择 Al_2O_3 折射率的经验值 ($n_1 = 1.675$) 作为理论计算 值。但控制实验条件,增大 Al2O3 的折射率使其接 近 1.715 是有利于减小膜系反射率的。

图 4(a) 为 Al₂O₃ 折射率变化 0.05 时,膜系反 射率随波长的变化情况。显然,Al2O3 折射率增加 0.05 时,反射率极小值减小为0.002%,极小值往长 波方向偏移至 282 nm 处; Al2O3 折射率减少 0.05 时,反射率极小值增大为0.40%,极小值往短波方 向偏移至 278 nm 处。

图 4(b) 为 SiO₂ 折射率变化 ±0.05 时,膜系反 射率随波长的变化情况。当 SiO2 折射率增加 0.05 时,反射率极小值往长波方向偏移至 287 nm;当 SiO2 折射率减少 0.05 时,反射率极小值往短波方 向偏移至 273 nm。但反射率极小值几乎相同,都约 为 0.10 %。

Reflectance *R* /% 0.1

0.0

36

(a)

12 期

对比图 3 和 4(a) 可以看到, SiO₂ 折射率误差比 Al₂O₃ 更容易导致反射率极小值波长偏离理论设计 值,因此实验中应尽量减小 SiO₂ 的折射率误差。



图 4 $n_1 = 1.625$, 1.675, 1.725 (a), $n_2 = 1.404$, 1.454, 1.504 (b) 时的反射率谱 Fig. 4 Reflectance spectra with $n_1 = 1.625$, 1.675, 1.725 (a), $n_2 = 1.404$, 1.454 and 1.504 (b)

3.3 其他误差对反射率的影响

2434

理论计算的前提是 Al₂O₃ 和 SiO₂ 的消光系数 非常小(此假设与实际相符,实验中测得消光系数都 小于 10⁻⁵),以至于不足以影响理论计算精确度。 本文通过模拟分析发现当 Al₂O₃ 和 SiO₂ 消光系数 不发生数量级变化时,膜系反射率在 = 280 nm 处 的变化可以忽略。

光入射角对反射率影响较大,只有当入射角小于 15°,才能保证 = 280 nm 处膜系反射率小于 0.30%。当入射角增大到 30°后, = 280 nm 处的反 射率就高达 3%以上了。

4 实验结果

采用电子束蒸发法在 4H-SiC 衬底上先后淀积 SiO₂ 和 Al₂O₃ 薄膜。SiO₂ 和 Al₂O₃ 的纯度都为 99.99%,本底真空是 3.0×10⁻³ Pa,氧分压为 2.0×10⁻² Pa,衬底温度为 300 。采用石英晶体 监控和光学监控控制薄膜生长,SiO₂ 的淀积速率为 0.58 nm/s,Al₂O₃ 的淀积速率为 0.28 nm/s,SiO₂ 和 Al₂O₃ 的物理厚度分别达到 96 nm 和 42 nm。

图 5 为 Al₂O₃/SiO₂/4H-SiC 膜系横断面 SEM 图,图中右下角的小图为白色方框部分的放大图。 图中膜层界面比较模糊,可能是由于界面处薄膜原 子之间发生了位移或交换。正是这种位移或交换在 界面处产生了很强的化学吸附键合力,极大增强了 膜层间的附着力。这从力学特性角度说明采用电子 束蒸发在 4H-SiC 基底上淀积 Al₂O₃/SiO₂ 紫外减 反膜的可行性^[7]。

图 6 比较了 Al₂O₃/ SiO₂ 双层减反膜和 SiO₂ 单 层膜的理论和实测反射谱。考虑到 4 H-SiC 探测器



图 5 Al₂O₃/SiO₂/4H-SiC 膜层结构 SEM 图 Fig. 5 Cross sectional SEM image of Al₂O₃/SiO₂/4H-SiC

layers structure



图 6 Al₂O₃/SiO₂ 双层膜理论和实测反射谱以及SiO₂ 单层膜理论反射谱

Fig. 6 Theoretical and practical reflectance spectrum of Al_2O_3/SiO_2 coatings and theoretical reflectance spectrum of SiO_2 single layer

的响应波段在 200 ~ 365 nm 之间,只就波长 200 ~ 400 nm 范围进行讨论。从图中可以看出,双层减反 膜的实测反射率曲线与理论曲线吻合较好,其极小 值波长 = 276 nm,对应反射率 0.33 %,与理论设计 值 = 280 nm, R = 0.09 %有小的偏差,其可能原因

是:1) 实际镀膜时的厚度误差,但实验中采用石英晶体监控和光学监控,薄膜厚度较为精确,所以对结果影响相对较小;2)造成结果偏差主要原因是 Al₂O₃和 SiO₂ 的实际折射率低于理论计算值。从前面图 4(a)、图 4(b)理论分析可知,当 Al₂O₃和 SiO₂ 折射率减小时,膜系反射率极小值增大并向短波方向偏移。

SiO2 单层膜的理论反射率极小值波长为 = 280nm,极小值为 2.98%,曲线比较平缓。对比双层 膜和单层膜的反射率曲线,可以看到采用双层膜结构 的优势:1)在 = 280 nm 参考波长处,双层膜的反射 率比单层膜小一个数量级;2)在 200~400 nm 范围, 双层膜反射率曲线狭小,具有更优的波长选择性,有 利于提高探测器探测特定波长紫外光的准确性。

与 SiO₂、Si₃N₄ 单层减反膜以及 Si₃N₄/SiO₂ 双 层减反膜相比,本文制备的 Al₂O₃/SiO₂ 双层减反 膜从实验角度验证了其具有更优的减反射效果。

5 结 论

选择 Al₂O₃ 和 SiO₂ 在 4H-SiC 基底上设计并 成功制备紫外双层减反射膜。利用编程计算得到理 论上 Al₂O₃ 和 SiO₂ 的物理膜厚分别为 42.0 nm 和 96.1 nm 时,在参考波长 = 280 nm 处能得到最小 反射率 0.09%。膜厚误差对膜系反射率影响较大, 但如能保持双层膜厚度总和与理论设计值一致有利 于降低反射率。SiO2 折射率误差对反射率大小和 极小值波长的影响大于 Al₂O₃,实验中增大 Al₂O₃ 的折射率使之接近 1.715 有利于减小膜系反射率。 用电子束蒸发法在 4H-SiC 上淀积 Al₂O₃/SiO₂ 双 层膜,厚度分别为 42 nm 和 96 nm。SEM 截面图表 明淀积的薄膜和基底具有较强的附着力。实测反射 率在 = 276 nm 处出现极小值 0.33 %, 与理论设计 值吻合较好,比 SiO2 单层膜反射率小一个数量级, 能较准确控制极小值波长,并且具有更优的波长选 择性。这些结果揭示了 Al₂O₃/SiO₂ 双层减反膜在 4H-SiC基紫外光电探测器上具有较好的应用前景。

参考文献

- 1 Feng Yan, Xiaobin Xin, Shahid Aslam et al. 4 H-SiC UV photo detectors with large area and very high specific detectivity [J]. *IEEE J. Quant. Electron.*, 2004, 40(9): 1313~1320
- 2 E. Monroy, F. Omnes, F. Calle. Wide-bandgap semiconductor ultraviolet photodetectors [J]. Semicond. Sci. Technol., 2003, 18(4): R33~R51
- 3 Tan Tianya, Huang Jianbing, Zhan Meiqiong et al.. Design and error analysis of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled

antireflection coating for LBO [J]. Chin. J. Lasers, 2006, $\mathbf{33}\,(2):242\sim247$

谭天亚,黄建兵,占美琼等.LBO 晶体上1064 nm,532 nm 二倍频 增透膜的设计及误差分析[J].中国激光,2006,33(2):242~247

- 4 Xu Jiangfeng, Chen Qiuling. Anti-reflection coating designed by genetic algorithm[J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(9): 1271~1275 徐江峰,陈秋灵. 增透膜的遗传算法设计[J]. 中国激光, 2007, **34**(9): 1271~1275
- 5 A. Sciuto, F. Roccaforte, S. Di Franco *et al.*. Photocurrent gain in 4H-SiC interdigit Schottky UV detectors with a thermally grown oxide layer[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **90**(22): Art. No.223570
- 6 Xiaping Chen, Weifeng Yang, Zhengyun Wu. Visible blind p-i-n ultraviolet photodetector fabricated on 4H-SiC[J]. *Microelectron. Engng.*, 2006, **83**(1): 104 ~ 106
- 7 F. Zhang, H. Zhu, W. Yang *et al.*. Al₂O₃/SiO₂ films prepared by electron-beam evaporation as UV antireflection coatings on 4H-SiC[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2008, **254**(10): 3045 ~ 3048
- 8 K. Zhu, D. Johnstone, J. Leach *et al.*. High power photoconductive switches of 4H SiC with Si_3N_4 passivation and n^+ -GaN subcontact [J]. Superlattices Microstruct., 2007, **41**(4): 264 ~ 270
- 9 Jun Hu, Xiaobin Xin, Jian H. Zhao et al. Highly sensitive visibleblind extreme ultraviolet Ni/4H SiC Schottky photodiodes with large detection area[J]. Opt. Lett., 2006, 31(11): 1591~1593
- 10 Avice M, Grossner U, Pintilie I et al.. Comparison of nearinterface traps in Al₂O₃/4H-SiC and Al₂O₃/SiO₂/4H-SiC structures[J]. Appl. Phys. Lett., 2006, **89** (22): Art. No. 222103
- 11 A. Paskaleva, R. R. Ciechonski, M. Syvajarvi *et al.*. Electrical behavior of 4H-SiC metal-oxide-semiconductor structures with Al₂O₃ as gate dielectric [J]. J. Appl. Phys., 2005, 97 (12): 124507-1~124507-5
- 12 J. T. Cox, G. Hass, R. F. Rowntree. Two-layer anti-reflection coatings for glass in the near infra-red [J]. Vacuum, 1954, (4): 445 ~ 455
- 13 Yuan Jingmei, Tang Zhaosheng, Qi Hongji *et al.*. Analysis of optical property for several ultraviolet thin film materials [J]. Acta Optica Sinica, 2003, 23(8): 984~988 袁景梅,汤兆胜,齐红基等. 几种紫外薄膜材料的光学常数和性能分析[J]. 光学学报, 2003, 23(8): 984~988
- 14 K. S. Shamala, L. C. S. Murthy, K. Narasimha Rao. Studies on optical and dielectric properties of Al₂O₃ thin films prepared by electron beam evaporation and spray pyrolysis method[J]. *Mat. Sci. Eng. B-Solid*, 2004, **106**(3): 264 ~ 294
- 15 Tony Huen. Reflectance of thinly oxidized silicon at normal incidence[J]. Appl. Opt., 1979, 18(12): 1927 ~ 1932
- 16 Michael E. Levinshtein, Sergey L. Rumyantsev, Michael S. Shur. Properties of Advanced Semiconductor Materials [M]. Yang Shuren, Yin Jingzhi transl., Beijing: Chemical Industry Press, 2003. 169~170 Michael E. Levinshtein, Sergey L. Rumyantsev, Michael S. Shur. 先进半导体材料性能与数据手册[M]. 杨树人,殷景志 译,北京:化学工业出版社, 2003. 169~170
- 17 Tan Tianya, Huang Jianbing, Zhan Meiqiong *et al.*. Design of 1064 nm, 532 nm, 355 nm frequency-tripled antireflection coating for LBO [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(7): 1327~1332 谭天亚,黄建兵,占美琼等. 三硼酸锂晶体上 1064 nm, 532 nm, 355 nm 三倍频增透膜的设计[J]. 光学学报, 2007, 27(7): 1327~1332
- 18 R. Thielsch, A. Gatto, J. Heber *et al.*. A comparative study of the UV optical and structural properties of SiO₂, Al₂O₃ and HfO₂ single layers deposited by reactive evaporation, ion-assisted deposition and plasma ion-assisted deposition [J]. *Thin Solid Films*, 2002, **410**(1~2): 86~93