

工作气压对磁控溅射 ZnO 薄膜结晶特性 及生长行为的影响*

刘志文 谷建峰 付伟佳 孙成伟 李 勇 张庆瑜†

(大连理工大学三束材料改性国家重点实验室, 大连 116024)

(2006 年 3 月 22 日收到, 2006 年 4 月 8 日收到修改稿)

采用射频反应磁控溅射方法, 在 Si(001) 基片上制备了具有高 c 轴择优取向的 ZnO 薄膜. 利用原子力显微镜、X 射线衍射、透射电子显微镜和透射光谱分析技术, 对不同工作气压下合成的 ZnO 薄膜的表面形貌、微观结构和光学性能进行表征, 研究了工作气压对 ZnO 薄膜的结晶性能以及生长行为的影响. 研究结果显示: 对于 Ar/O₂ 流量比例接近 1:1 的固定比值下, ZnO 薄膜的生长行为主要取决于成膜空间中氧的密度, 临界工作气压介于 0.5—1.0 Pa 之间. 当工作气压小于临界值时, ZnO 薄膜的成核密度较高, 且随工作气压的变化明显, ZnO 的生长行为受控于氧的密度, 属于氧支配的薄膜生长; 当工作气压大于临界值以后, ZnO 薄膜的成核密度基本保持不变, Zn 原子的数量决定薄膜的生长速率. 在 0.1—5.0 Pa 的工作气压范围内, 均可获得高度 c 轴取向的 ZnO 薄膜, 但工作气压的变化改变着 ZnO 晶粒之间的界面特征和取向关系. 随着工作气压的增加, ZnO 晶粒之间的界面失配缺陷减少, 但平面织构特征逐渐消失, 三叉晶界的空洞逐渐扩大, 薄膜的密度下降, 折射率减小.

关键词: ZnO 薄膜, 磁控溅射, 表面形貌, 微观结构, 光学性能

PACC: 7280E, 6855, 7855

1. 引 言

ZnO 作为新一代的宽带半导体材料, 具有优异的光学、电学及压电性能, 在发光二极管、光探测器、电致荧光器件、透明导电薄膜、气敏传感器等诸多领域有着广泛的应用^[1-3]. 自从 1997 年 Tang 等^[4]报道了 ZnO 薄膜的近紫外受激发射现象以后, ZnO 再次成为当今半导体材料研究领域的热点. 目前, ZnO 薄膜的研究重点之一是如何制备高质量的 ZnO 薄膜^[5,6]. 为此, 人们对 ZnO 薄膜的制备工艺进行了广泛研究, 如分子束外延^[4]、化学气相沉积^[7]、脉冲激光沉积^[8]、溶胶-凝胶^[9]和反应磁控溅射^[10-13]等, 研究了不同基片及过渡层对 ZnO 薄膜质量的影响, 并取得了一些有价值的研究成果. 例如: Chen 等人^[14]发现 MgO 作为过渡层对 ZnO 在 (0001) 取向的 Al₂O₃ 基体上的层状生长是有利的; Ko 等人^[15]在研究 Zn/O 原子比对等离子体辅助下 ZnO 分子束外延生长行为的影响中发现, ZnO 薄膜的生长是受气氛中的 O

浓度所控制的, 并给出了生长过程中 ZnO 表面重构结构变化的相图. 这些有关生长行为的研究结果, 对于制备高质量的 ZnO 薄膜具有重要价值.

反应磁控溅射作为一种大面积、低成本的薄膜制备技术, 在 ZnO 薄膜制备中有着广泛的应用. 近几年, 通过各国学者的不断努力, 利用反应磁控溅射方法制备的 ZnO 薄膜已经实现了室温光致荧光发射^[16,17], 使得反应磁控溅射技术受到人们越来越多的关注. 然而由于溅射过程所涉及的控制参数多, 实验工艺相对复杂, 使得人们对 ZnO 薄膜的生长行为及结晶特性的了解还不够深入, 所制备的 ZnO 薄膜质量难以满足光电器件的要求. 目前, 利用反应磁控溅射方法制备高质量 ZnO 薄膜的关键问题是了解薄膜生长过程中影响 ZnO 薄膜质量的主要工艺参数以及保证制备工艺的稳定性. 由于反应溅射现象相当复杂, 目前尚无完整的溅射理论可以用来分析溅射现象. 多数学者一般是通过分析薄膜的微观状态、性能与工艺参数之间的关系探索最佳生长条件, 但缺乏比较系统研究. 在众多工艺参数中, 我们发现

* 国家自然科学基金(批准号 50240420656)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qy Zhang@dlut.edu.cn

工作气压对 ZnO 薄膜的生长行为起着至关重要的作用,并决定着 ZnO 薄膜的光学性能。

本文采用射频反应磁控溅射方法,在 Si(001)基片上制备了具有高度 c 轴择优取向的 ZnO 薄膜.利用原子力显微镜(AFM)、X 射线衍射(XRD)、透射电子显微镜(TEM),对不同工作气压条件下制备的 ZnO 薄膜微观结构和形貌进行了分析,研究了工作气压对 ZnO 薄膜的结晶特性及生长行为的影响,同时利用透射光谱等表征技术对薄膜的光学性能进行分析。

2. 实验方法

2.1. ZnO 薄膜的制备方法

实验采用射频反应磁控溅射方法制备 ZnO 薄膜.实验中选择金属 Zn 作为溅射靶,溅射靶直径为 60 mm,厚 3 mm,纯度优于 99.99%. ZnO 薄膜的基片采用 n 型(001)取向的单晶 Si 片,厚度为 420 μm ,电阻率 2—4 Ω/cm . Si 基片清洗处理的方法为:将 Si 片放入丙酮、乙醇、去离子水中分别用超声波清洗 5 min,再在体积比为 3:1 的 $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_3\text{PO}_4$ 的溶液中浸泡 20 h,去除 Si 基片表面的油污及其他污染物,最后,经去离子水冲洗,用干燥 N_2 气吹干后,快速放入真空室. ZnO 薄膜的沉积是在 Ar 和 O_2 混合气氛下进行的,Ar 和 O_2 气体的纯度均为 99.999%. 真空室经涡轮分子泵抽至到底底真空度为 4.0×10^{-4} Pa. 采用质量流量计控制溅射过程中的工作气压,Ar 和 O_2 表观质量流量分别为 20 cm^3/min 和 19 cm^3/min . 关于 ZnO 生长温度和退火温度对薄膜的发光性能研究过程中,我们发现 750 $^\circ\text{C}$ 时 ZnO 薄膜已经实现了室温光致荧光发射^[16,18],获得良好的晶体质量. 因此,选择如下工艺参数:沉积温度 750 $^\circ\text{C}$, Si 基片与溅射靶之间的距离为 70 mm,溅射靶的射频输入功率为 80 W,沉积时间为 2 h,工作气压分别为 0.1, 0.3, 0.5, 1.0, 3.0 和 5.0 Pa. 在薄膜的制备过程中,样品台以 4.8 $^\circ/\text{s}$ 的速度自转以保证沉积薄膜的均匀性. 在所有薄膜制备完成以后,将真空室充入干燥 N_2 气后取出样品,并放入充有 Ar 气的玻璃试管中保存,样品未进行任何退火处理。

2.2. ZnO 薄膜的结晶特性表征和光学性能测量

ZnO 薄膜的表面形貌表征是在 Digital IIa 型原

子力显微镜上,室温条件下采用接触模式完成的,其中扫描频率为 2 Hz,扫描范围为 $1000 \times 1000 \text{ nm}^2$. 薄膜的结晶特性研究采用 X 射线衍射(XRD)分析和透射电子显微镜(TEM)观察. XRD 分析是在 D/MAX-2400 衍射分析仪上进行的,X 射线源为 Cu K_α 辐射,波长 $\lambda = 0.15418 \text{ nm}$. TEM 分析是在 Philips Tecnai F20 上进行的,加速电压为 200 kV. 电镜样品制备通过机械研磨、抛光减薄至 30 μm 以下,最后采用 Gatan 公司粒子减薄仪减薄获得. 薄膜的光学性能研究主要是通过透射光谱完成的. 薄膜的透射光谱是在 Lambda 35 UV/VIS 光谱仪上测量的,通过拟合光谱的方法确定折射率、消光系数、光学禁带宽度等薄膜的光学参数。

3. 分析与讨论

3.1. 工作气压对 ZnO 薄膜表面形貌的影响

原子力分析结果表明:工作气压在 0.1—0.5 Pa 时 ZnO 薄膜的表面形貌变化明显;而在 1.0—5.0 Pa 范围内,薄膜的表面形貌相对比较稳定,没有明显变化. 图 1 给出了 0.1, 0.3, 0.5 和 3.0 Pa 条件下 ZnO 薄膜典型的表面形貌. 从图中可以看出:在 0.1 Pa 时,薄膜表面岛密度高,岛的尺寸小,呈现不规则形状;工作气压为 0.3 Pa 时,薄膜表面岛密度有所降低,表面岛呈现多边形,岛的尺寸增加;当工作气压增加到 0.5 Pa 时,表面岛形貌轮廓十分模糊,说明此时的薄膜生长处于一种过渡状态;当工作气压高于 1.0 Pa 以后, ZnO 薄膜的表面岛具有比较规则的形状,呈方形,大多数表面岛之间彼此平行,表面岛尺寸也较大。

图 2 给出了表面岛密度和平均尺度随工作气压变化的定量描述. 从图中可以明显看出:在 0.1 Pa 时,表面岛密度分布的半峰宽度很窄,说明薄膜表面岛的起伏比较小,薄膜表面平滑. 随着工作气压的升高,表面岛密度分布的半峰宽逐渐变大,说明薄膜表面岛的高度起伏增加;从表面岛密度的数值上看,0.1 Pa 时薄膜处于高密度生长状态,随着工作气压的增加,薄膜的表面岛密度降低;大于 1.0 Pa 以后,表面岛密度基本保持不变. 工作气压低于 1.0 Pa 时的表面岛尺寸增长较快;工作气压高于 1.0 Pa 以后,表面岛的尺寸基本不变。

根据薄膜生长的形貌演化动力学理论,表面粗

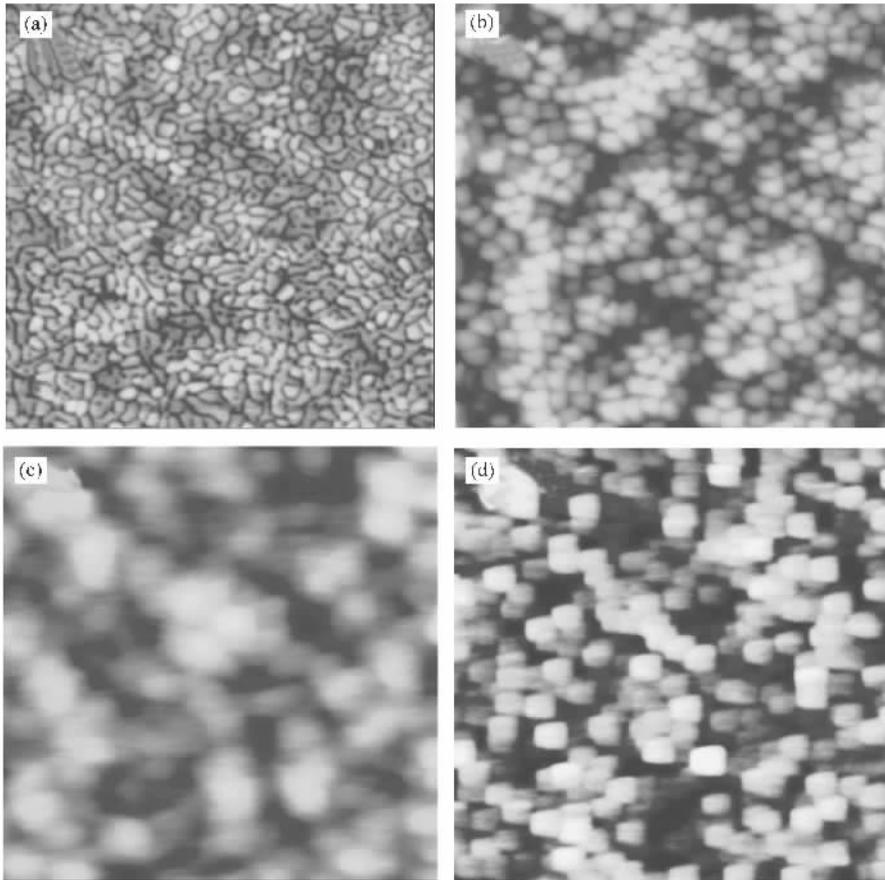


图1 不同工作气压下的 ZnO 薄膜表面形貌 其中扫描范围为 $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$: (a) 0.1 Pa, $Z = 10\text{nm}$; (b) 0.3 Pa, $Z = 30\text{nm}$; (c) 0.5 Pa, $Z = 6\text{nm}$; (d) 3.0 Pa, $Z = 6\text{nm}$

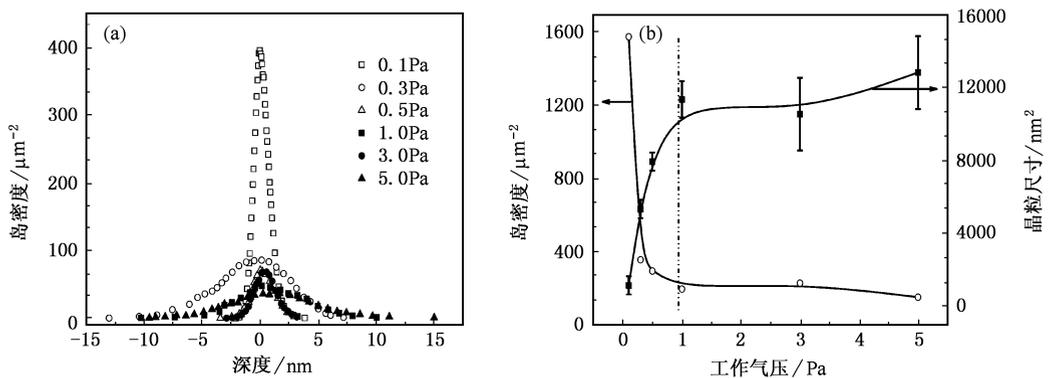


图2 (a) 表面岛密度随深度的变化 (b) 表面岛密度和平均尺度随工作气压的变化

糙度随薄膜厚度的增加而增加. 因此, 尽管表面形貌的比较应该以相同薄膜厚度为前提, 但由于薄膜厚度随工作气压的增加而逐渐减小, 所以平均晶粒尺寸随工作气压变化的规律在定性上是正确的. 考虑到我们采用固定的 Ar/O_2 流量比例, 0.5—1.0 Pa 附近出现的 ZnO 薄膜生长行为的转变实际意味着存

在一个控制 ZnO 薄膜生长的临界氧气分压; 在氧气分压达到临界值之前, 薄膜处于相对高密度生长状态说明此时的薄膜处于氧控制生长阶段, 成膜空间中的氧含量决定着薄膜的生长速率, 因此表面岛密度以及尺寸变化明显; 当氧气分压超过临界值之后, 薄膜表面岛密度以及尺寸基本处于稳定状态, 说明

此时的薄膜处于 Zn 控制生长阶段,由于此时成膜空间中的 Zn 含量比较低,成核驱动力较小,使得 ZnO 薄膜的临界成核尺寸较大,但变化较小.在磁控溅射条件下观察到的 ZnO 薄膜这种生长行为与 Ko 等人^[15]在等离子体辅助下 ZnO 分子束外延的研究结论是一致的.我们对 ZnO 薄膜制备过程中的等离子体发射光谱研究发现^[19],当 O₂ 含量很低时,金属 Zn 靶表面的氧化层就已基本形成,并随 O₂ 含量的增加而增加,从而导致金属 Zn 靶的溅射产额的下降.正是氧气分压随工作气压的增加而增加,增加了金属 Zn 靶表面氧化程度,使得溅射速率降低,导致成核密度的下降.需要指出的是临界氧气分压与实际放电条件有关.对于不同的放电方式和放电功率,金属 Zn 靶的溅射产额不同,所对应的临界氧气分压也不同.

3.2. 工作气压对 ZnO 薄膜微观结构的影响

所有样品的 XRD 谱仅观察到 ZnO 的(0002)和(0004)衍射峰,说明不同工作气压下的 ZnO 薄膜均为 *c* 轴高度择优生长.图 3 是不同工作气压下沉积

的 ZnO 薄膜的平面 TEM 照片以及相应的选区电子衍射图.对比可以看出:TEM 照片所显示的晶粒形状和晶粒尺寸均与 AFM 图像中观察到的表面岛形貌基本一致.选区电子衍射结果显示,在 0.1 Pa 条件下,ZnO 晶粒的平面取向之间具有弱的织构特征;随着工作气压的增加,衍射弧段变小,且方向集中,说明其织构特征变得更为明显;当工作气压为 3.0Pa 时,ZnO 晶粒之间的平面取向关系不再具有织构特征.这一结果说明,低工作气压沉积的 ZnO 薄膜不仅在垂直表面的方向上呈高度的 *c* 轴取向,而且在平行于表面方向上也存在的固定的取向关系.进一步的电子衍射分析表明:ZnO 和 Si 基片之间的取向关系为 ZnO(0001) // Si(001), ZnO[01 $\bar{1}$ 0] // Si[010] 或者 ZnO[$\bar{2}$ 110] // Si[110];而高工作气压下沉积的 ZnO 仅表现为高度的 *c* 轴取向,而没有固定的取向关系.

根据上述分析结果,我们认为 ZnO 晶粒取向关系的变化,与 ZnO 在 Si 基体(001)表面的形核有直接的关系.关于 ZnO 形核机制研究过程中^[20],我们发现 ZnO 在 Si 基片表面实际上存在两种不同的成

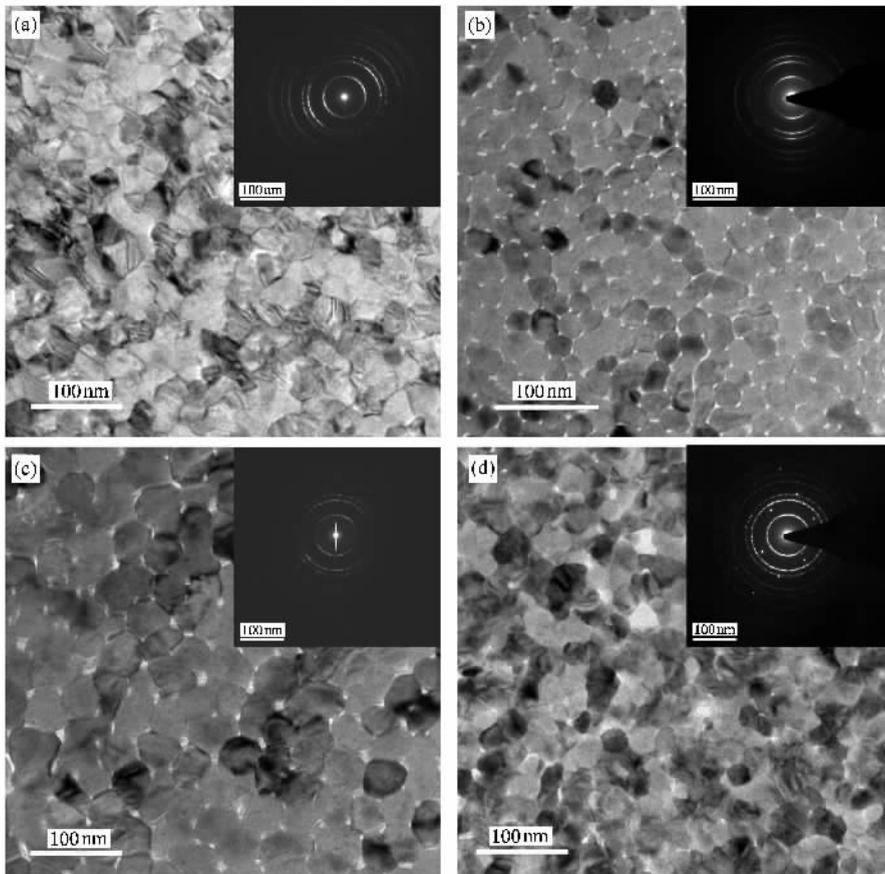


图 3 在 0.1 0.3 0.5 和 3.0 Pa 条件下沉积的 ZnO 薄膜 TEM 平面像及 SAD

核机制,即初始阶段的本征缺陷成核机制和生长过程中的轰击缺陷成核机制.本征缺陷成核与 Si 基片表面的本征缺陷有关;轰击缺陷成核则与载能粒子的能量有关.当工作气压较低时,气体分子的平均自由程比较大(0.1 Pa 时的平均自由程约为 10 cm),因此,等离子体放电过程中产生的高能粒子的能量损失较小,从而导致基片表面的轰击缺陷比较多,使得 ZnO 成核密度较大.同时,由于载能粒子轰击对基片表面的刻蚀作用,使得 ZnO 薄膜的成核与基片表面之间存在一定的生长取向关系,其生长行为受到 ZnO 薄膜与 Si 基体取向关系的影响,从而导致 ZnO 薄膜的织构特征^[21].随着工作气压的增加,气体分子的平均自由程比较小(3 Pa 时的平均自由程约为 0.3 cm),高能粒子的能量损失增加,对 Si 基片表面的刻蚀作用减小,薄膜的织构特征逐渐消失.因此,我们认为工作气压是通过改变载能粒子的能量分布以及成膜空间的氧含量影响着 ZnO 薄膜的生长行为.

进一步分析平面 TEM 像可以发现,不同工作气压下的晶界特征也存在着比较大的差异.图 4 是不

同工作气压下典型的 ZnO 晶界以及三叉晶界结构高分辨像.可以看到,当工作气压为 0.1 Pa 时,ZnO 晶粒之间的晶界较宽,且存在比较多的周期性错配(如图 4(a)中的 AB 所示),但三叉晶界所占面积较小,晶粒之间结合非常致密;当工作气压为 0.3 Pa 和 0.5 Pa 时,晶粒之间的晶界相对较窄,且周期性错配较小(如图 4(b)中的 AB 所示),但三叉晶界处出现明显的亮区,这意味着三叉晶界处有空洞存在,而且这种三叉晶界空洞随工作气压的增加有逐渐扩大的趋势.我们认为,ZnO 薄膜的晶界结构主要取决于薄膜的成核方式和生长速率,当工作气压较低时,氧气分压较低,高的 Zn 溅射产额导致 ZnO 的成核驱动力比较大,形核自由能低,晶粒密度比较大,但尺寸较小,因此薄膜的晶粒堆积密度比较大,三叉晶界所占面积较小;但由于薄膜的生长速率比较大,使得因晶粒取向所导致的晶格错配无法充分弛豫,错配晶界比较宽;随着工作气压的增加,氧气分压增加,Zn 靶的溅射产额下降导致 ZnO 的成核驱动力减小,形核自由能增加,晶粒密度减小,但尺寸增加,因此薄膜的晶粒堆积密度降低,三叉晶界所占面积增

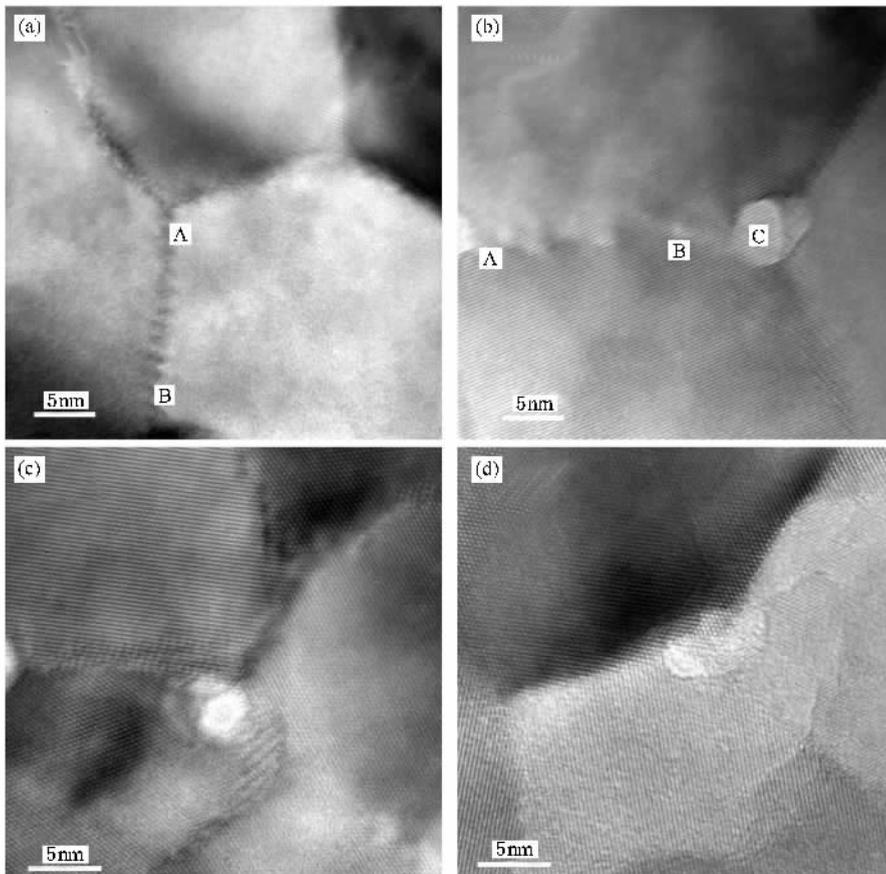


图 4 ZnO 晶界和三叉晶界结构的高分辨像 (a)0.1 Pa,(b)0.3 Pa,(c)0.5 Pa,(d)3.0 Pa

加,甚至出现空洞;由于薄膜生长速率的降低,表面原子的扩散长度增加,使得晶格错配的弛豫逐渐充分,错配晶界的数量逐渐减少,其宽度也逐渐减小.

3.3. ZnO 薄膜的光学性能表征

ZnO 薄膜的光学性能取决于薄膜的结晶质量,光学特性分析可以反映出薄膜更细微层次上的结晶特征,如缺陷和杂质方面的信息.图 5 是不同工作气压下 ZnO 薄膜的透射光谱以及 0.1 Pa 时的拟合谱与测量结果的对比.从图中可以看出,ZnO 薄膜在可见及近红外光范围(390—1100 nm)内,不同工作气压下的 ZnO 薄膜均具有很高的透射率,说明薄膜内的缺陷和杂质吸收很小.拟合光谱是以一阶 Sellmeier 方程为基础的拟合结果,可以看到拟合光谱与实验结果吻合很好,平均误差小于 2%,说明拟合结果是可信的.表 1 是根据光谱拟合所得到的不同工作气压下 ZnO 薄膜的厚度和光学常数.从表 1 中可看到,在 O_2/Ar 气体流量比例固定的情况下,工作气压对薄膜厚度的影响非常明显.ZnO 薄膜生长速率随工作气压的增加而迅速下降的主要原因是氧分压的增加所导致的金属 Zn 靶表面的氧化,

这与我们通过薄膜表面形貌的变化所得到的结论是一致的.

在 $\lambda = 632.8$ nm 处,不同工作气压下 ZnO 薄膜的折射率 n 介于 1.88—2.00 之间,比 ZnO 单晶的折射率($n = 2.05$)略低,与 Moustaghfir 等人^[22]利用射频磁控溅射方法和 Sun 等人^[23]利用 PLD 方法所制备的 ZnO 薄膜接近.折射率随工作气压的增加呈逐渐下降的趋势,反映了薄膜中 ZnO 晶粒堆砌密度的下降.这与我们的高分辨电子显微镜所观察到的结果是一致的.同时注意到,工作气压在 0.1—1.0 Pa 时,ZnO 薄膜的消光系数很小,一般在 10^{-6} — 10^{-5} 之间,低于商品 ZnO 单晶的消光系数($< 3.4 \times 10^{-5}$);而工作气压为 3.0—5.0 Pa 时,消光系数迅速增加.我们认为:导致消光系数的增加的原因可能有两个,一方面可能意味着 ZnO 薄膜的晶粒内部缺陷密度的增加,而 ZnO 晶粒内部缺陷密度的增加可能与高工作气压导致的生长过程中 ZnO 薄膜表面的 O_2 和 Ar 吸附率增加有关.高吸附率的 O_2 和 Ar 使得薄膜中非成键态的 O_2 和 Ar 的含量增加,从而导致缺陷密度的增加.另一方面可能是由于薄膜厚度不足而导致的测量误差.

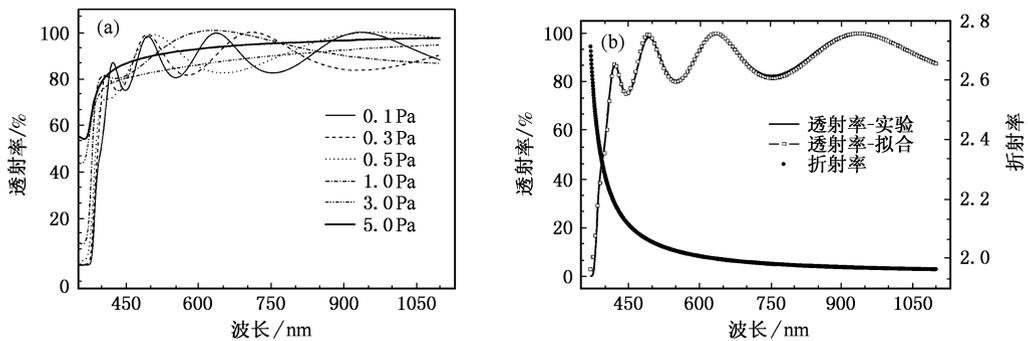


图 5 (a)不同工作气压 ZnO 薄膜透射谱,(b)0.1 Pa 样品透射谱的拟合谱、实验谱和折射率曲线

表 1 不同工作气压下 ZnO 薄膜的光学性能

工作气压/Pa	膜厚/nm	折射率/ n_{633}	消光系数/ $k_{633} \times 10^{-6}$	E_g/eV
0.1	476	2.00	2.91	3.270
0.3	368	1.95	12.95	3.277
0.5	249	1.96	4.23	3.277
1.0	166	1.88	12.57	3.283
3.0	53	1.92	7900.00	3.259
5.0	28	1.98	7200.00	3.226

带隙宽度.根据半导体的能带理论,直接带隙半导体材料的吸收系数 $\alpha^2 \propto h\nu - E_g^{[24]}$,其中 $h\nu$ 为光子能量, E_g 为带隙宽度.表 1 中 E_g 就是根据切线法所得到的 ZnO 薄膜的光学带隙宽度随工作气压的变化.可以看到,不同工作气压的 ZnO 薄膜的光学带隙宽度 3.28 eV 左右,与 ZnO 体材料的室温光学带隙宽度基本是一致的.这说明工作气压对 ZnO 的光学禁带宽度的影响不大,不同工作气压下的光学禁带宽度的差异可能与 ZnO 薄膜的应力状态不同有关.高工作气压下的禁带宽度出现比较大偏差的原因是因为薄膜厚度不足引起的测量误差所导致的,因此此

利用透射光谱可以同时测定 ZnO 薄膜的光学

时的薄膜厚度已经远小于光的波长值。

4. 结 论

1) 对于 Ar/O₂ 流量比例接近 1:1 的固定比值下 ZnO 薄膜的生长行为随工作气压化的临界点介于 0.5—1.0 Pa 之间。当工作气压小于临界值时, ZnO 薄膜的成核密度较高, 且随工作气压的变化明显; 当工作气压大于临界值以后, ZnO 薄膜的成核密度基本保持不变;

2) 在射频反应磁控溅射的情况下, ZnO 薄膜的

生长行为主要取决于成膜空间中氧的密度。当工作气压小于临界值时, ZnO 的生长行为受控于氧的密度, 属于氧支配的薄膜生长; 当工作气压大于临界值以后, ZnO 的生长行为受控于 Zn 的密度, Zn 原子的数量决定薄膜的生长速率。

3) 在 0.1—5.0 Pa 的工作气压范围内, 均可获得高度 *c* 轴取向的 ZnO 薄膜, 但工作气压的变化改变着 ZnO 晶粒之间的界面特征和取向关系。随着工作气压的增加, ZnO 晶粒之间的界面失配缺陷减少, 但平面织构特征逐渐消失, 三叉晶界的空洞逐渐扩大, 薄膜的密度下降、折射率减小。

- [1] Bagnall D M , Chen Y F , Zhu Z , Tao T , Koyama S , Shen M Y , Goto T 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 2230
- [2] Ryu Y R , Kim W J , White H W 2000 *J. Cryst. Growth.* **19** 419
- [3] Aoki T , Hatanaka Y , Look D C 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 3257
- [4] Tang Z K , Wong G K L , Yu P 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 3270
- [5] Kim S K , Jeong S Y , Cho C R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 502
- [6] Sieber I , Wanderka N , Urban I , Dorfel I , Schierhorn E , Fensker F , Fuhs W 1998 *Thin Solid Films* **330** 108
- [7] Wang J Z , Du G T , Zhang Y T *et al* 2004 *J. Cryst. Growth.* **263** 269
- [8] Guo X L , Tabata H , Kawai T 2001 *J. Cryst. Growth.* **213** 122
- [9] Lee J H , Ko K H , Park B O 2003 *J. Cryst. Growth.* **247** 122
- [10] Lin B , Fu Z , Jia Y 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 943
- [11] Fang Z B , Gong H X , Liu X Q , Xu D Y , Hang C M , Wang Y Y 2003 *Acta. Phys. Sin.* **52** 1748 (in Chinese) [方泽波、龚恒翔、刘雪芹、徐大印、黄春明、王印月 2003 物理学报 **52** 1748]
- [12] Jeong S H , Kim B S , Lee B T 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2625
- [13] Zhang D H , Wang Q P , Xue Z Y 2003 *Acta. Phys. Sin.* **52** 1484 (in Chinese) [张德恒、王卿璞、薛志营 2003 物理学报 **52** 1484]
- [14] Chen Y , Ko H , Hong S , Yao T 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 559
- [15] Ko H , Yao T , Chen Y , Hong S 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 4354
- [16] Sun C W , Liu Z W , Zhang Q Y 2006 *Acta. Phys. Sin.* **55** 0430 (in Chinese) [孙成伟、刘志文、张庆瑜 2006 物理学报 **55** 0430]
- [17] Özgür Ü , Alivov Y I , Liu C , Teke A , Reshchikov M A , Doğan S , Avrutin V , Cho S J , Morkoç H 2005 *J. Appl. Phys.* **89** 041301
- [18] Sun C W , Liu Z W , Qin F W , Zhang Q Y , Liu K , Wu S F 2006 *Acta. Phys. Sin.* **55** 1390 (in Chinese) [孙成伟、刘志文、秦福文、张庆瑜、刘 琨、吴世法 2006 物理学报 **55** 1390]
- [19] Li Y , Sun C W , Liu Z W , Zhang Q Y 2006 *Acta. Phys. Sin.* **55** 1965 (in Chinese) [李 勇、孙成伟、刘志文、张庆瑜 2006 物理学报 **55** 1965]
- [20] Liu Z W , Gu J F , Sun C W , Zhang Q Y 2006 *Acta. Phys. Sin.* **55** 1965 (in Chinese) [刘志文、谷建峰、孙成伟、张庆瑜 2006 物理学报 **55** 1965]
- [21] Liu Z W , Sun C W , Zhang Q Y , Wang Y N , Wu B , Jin Z X 2006 *Surf. Coat. Technol.* (to be published)
- [22] Moustaghfir A , Tomasella E , Amor S *et al* 2003 *Surf. Coat. Technol.* **174-175** 193
- [23] Sun X W , Kwok H S 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 408
- [24] Joo H Y , Kim H. J , Kim S J , Kim S Y 1999 *J. Vac. Sci. Technol. A* **17** 862

Influence of working pressure on the crystallinity and growth behavior of ZnO films deposited by reactive radio-frequency magnetron sputtering^{*}

Liu Zhi-Wen Gu Jian-Feng Fu Wei-Jia Sun Cheng-Wei Li Yong Zhang Qing-Yu[†]

(*State Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beam,*

Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

(Received 22 March 2006; revised manuscript received 8 April 2006)

Abstract

Using the reactive radio-frequency magnetron sputtering method, ZnO films were deposited on Si (001) and quartz substrates at different pressures with a fixed flow ratio of Ar to O₂. The influence of working pressure on the crystallinity and growth behavior were studied with the help of characterization of the morphology, microstructure and optical properties of the films by atomic force microscopy (AFM), X-ray diffraction (XRD), transmission electron microscopy (TEM) and transmittance spectra respectively. It is found that a critical working pressure can be taken as 0.5—1.0 Pa. With increasing the working pressure from 0.1 Pa up to the critical working pressure, the density of ZnO grains decreases and the films have high *c*-axis orientation with strong in-plane textured feature. When the working pressure exceeds the critical working pressure, the density of ZnO grains is roughly a constant and the in-plane textured feature disappears. The influence of working pressure on the refractive index, extinction coefficient and optical energy gap is also discussed in the paper.

Keywords: ZnO film, magnetron sputtering, morphology, microstructure, optical property

PACC: 7280E, 6855, 7855

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50240420656).

[†] Corresponding author. E-mail: qy Zhang@dlut.edu.cn