

外加磁场对射频磁控溅射制备铝掺杂氧化锌薄膜影响的研究*

陈明 周细应[†] 毛秀娟 邵佳佳 杨国良

(上海工程技术大学材料工程学院, 上海 201620)

(2013年12月29日收到; 2014年1月22日收到修改稿)

利用射频磁控溅射法制备了铝掺杂氧化锌(AZO)透明导电薄膜, 在传统的磁控溅射系统中引入外加磁场, 研究了外加磁场对AZO薄膜沉积速率、形貌结构及光电特性的影响. 研究表明, 外加磁场后薄膜的沉积速率从不加磁场的13.04 nm/min提高到了19.93 nm/min; 外加磁场后薄膜表面平整致密、颗粒大小均匀, 结晶质量较高, 而不加磁场薄膜表面形貌呈蠕虫状, 薄膜质量较差. 溅射时间为90 min时, 外加磁场前后AZO薄膜方阻分别为30.74 Ω/\square 和12.88 Ω/\square . 外加磁场对薄膜可见光透过率影响不大, 但使薄膜的吸收边蓝移现象更明显. 运用ansys软件对磁控溅射二维磁场分布模拟后发现, 外加磁场提高了靶上方横向磁场强度, 改善了磁场分布的均匀性, 加强了磁场对电子的磁控作用, 提高了靶电流, 是AZO薄膜的溅射速率、光电性能和形貌结构得到提高和优化的原因.

关键词: 外加磁场, 磁控溅射, AZO, 透明导电薄膜

PACS: 81.15.Cd, 81.05.Dz, 78.20.Bh

DOI: 10.7498/aps.63.098103

1 引言

透明导电氧化物(TCO)薄膜是指在可见光波长范围内平均透射率 $T_{\text{avg}} > 80\%$ 、电阻率在 $10^{-3} \Omega\cdot\text{cm}$ 以下的一种薄膜材料, 由于其特殊的光电性能, 现已成为薄膜材料领域的研究重点, 广泛应用于太阳能电池、平板显示器和传感器等领域^[1-3]. 氧化铟锡(ITO)薄膜由于其优异的光电特性是目前应用最为广泛的TCO薄膜. 然而, 铟资源的严重短缺和高成本已成为ITO薄膜进一步应用和发展的桎梏^[4]. 因此, 寻找一种可替代ITO的新型透明导电薄膜势在必行. 铝掺杂氧化锌(AZO)透明导电薄膜在具有和ITO薄膜可比拟的光电性能的同时, 具有资源丰富、廉价无毒、化学和热稳定性良好等优势, 被认为是替代ITO薄膜的最佳候选材料^[5,6].

目前制备AZO薄膜的方法主要有: 磁控溅射法^[7]、脉冲激光沉积(PLD)^[8]、溶胶-凝胶法^[9]、真空蒸镀和化学气相沉积^[10]等. 在这些制备方法中, 磁控溅射法具有高效廉价、易于控制以及薄膜质量高等^[11]优点成为目前制备AZO薄膜最主要的一种方法. 然而传统的磁控溅射系统由于靶面上方横向磁感应强度较低、磁场分布不均匀, 磁场对二次电子的磁控作用较弱, 使得靶面附近等离子体浓度偏低, 造成了薄膜沉积速率缓慢、薄膜致密度和均匀性较差. 当前传统磁控溅射的磁场强度一般在0.03—0.05 T范围内, 普遍认为当磁场强度超过此范围便不利于电子的动量累积, 从而不利于工作气体的电离和维持放电^[12]. 但Hiroshi等^[13]利用超导装置在磁控靶上方形成了强度高达1.0 T的超强磁场, 他们发现高强磁场可使维持放电的工作气压降至 10^{-3} Pa, 并由此制备了性能优良镓掺杂氧化锌(GZO)薄膜. 因此作者认为关于磁场大小及

* 上海工程技术大学研究生创新项目(批准号: 13KY0508)和上海高校一流学科建设计划(批准号: YLJX12-2)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: zhouxiying@smmail.cn

其分布对磁控溅射镀膜的影响仍值得深入研究. 本文在平衡磁控溅射系统中引入外加磁场, 通过提高靶材上方的磁场大小、改善其分布均匀性, 研究了外加磁场对磁控溅射法制备的AZO透明导电薄膜的沉积速率、光电性能和形貌结构的影响, 并运用ansys软件模拟计算了靶材上方二维磁场的分布, 分析了外加磁场对AZO薄膜性能影响的机理.

2 试验方法

实验采用FJL560D2型超高真空磁控溅射系统, 实验装置和圆形磁控靶的结构如图1所示, 在靶材上方15 mm处安置一个环形永磁铁(图1中标1), 磁环端部磁感应强度为 3.0×10^{-1} T, 磁铁高度为10 mm. 实验靶材选用纯度为99.99% AZO陶瓷靶(ZnO和Al₂O₃的质量分数分别为98%和2%), 靶材尺寸为60 mm×3.5 mm, 靶基距为70 mm. 基底是普通载波片, 沉积前分别用丙酮和无水酒精超声清洗15 min、去离子水冲洗10 min, 再用烘箱烘干后置于溅射室中. 当溅射室本底真空度达到 3.0×10^{-4} Pa时, 通入纯度为99.99%的高纯Ar气. 正式溅射前先预溅射10 min以去除靶材表面杂质和污染物. 在其他工艺条件相同的情况下, 采用传统不加磁场磁控溅射和外加磁场磁控溅射制备AZO透明导电薄膜, Ar气流量30 sccm, 工作气压1.0 Pa, 射频功率100 W.

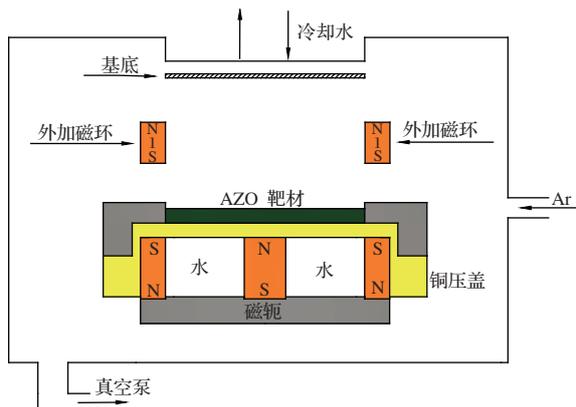


图1 实验装置示意图

薄膜的微观结构用Pw3040/60 X'pert PRO型X射线衍射仪(XRD)检测, 采用Cu K_α射线($\lambda = 0.154506$ nm), 扫描范围为20°—80°; 使用Hitachi S-3400N型扫描电镜(SEM)观察薄膜的表

面形貌和表征薄膜厚度; 利用Dimension Icon型原子力显微镜(AFM)分析了薄膜的表面粗糙度; 使用SDY-4型四探针测试仪测量AZO薄膜的方阻值; 透射光谱由Lambda 35型紫外-可见分光光度计检测, 入射光波长为300—900 nm.

3 结果与讨论

3.1 外加磁场对AZO薄膜微观结构的影响

图2是外加磁场和外加磁场不同溅射时间制备的AZO薄膜的X射线衍射图谱(0 T表示不加磁场), 所有样品在衍射角 2θ 为34.28°附近都出现了明显的(002)晶面衍射峰, 此位置与ZnO晶体(002)衍射峰位置($2\theta = 34.42^\circ$)非常接近, 这表明Al掺杂并没有改变ZnO薄膜的晶体结构, 同时使衍射峰的位置向低角度方向移动. 图谱中除了一个强度很高的(002)主衍射峰外, 还出现了两个强度很弱的卫星峰, 说明薄膜呈(002)晶面择优生长. 从图2可以看出, 外加磁场并没有改变薄膜生长的取向性, 相同溅射条件下, 加磁场后AZO薄膜的(002)晶面衍射峰强度更高, 衍射峰强度的增强说明外加磁场有利于改善AZO薄膜的结晶质量.

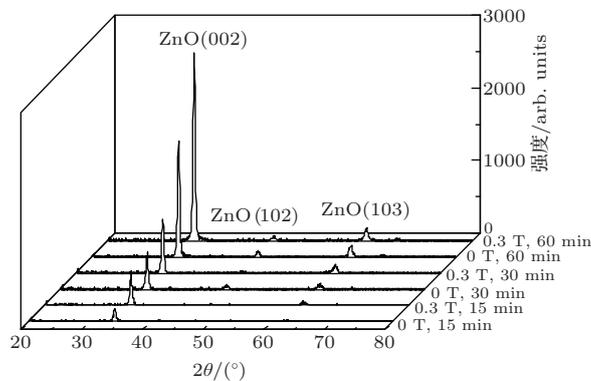


图2 外加磁场和外加磁场不同溅射时间制备的AZO薄膜的XRD图谱

根据Scherrer公式^[14]可以计算衍射方向上的平均晶粒尺寸,

$$D = k\lambda/\beta \cos(\theta), \quad (1)$$

其中 λ 是X射线波长, 取0.154506 nm; k 为常数, 取1; β 为衍射峰的FWHM; θ 为衍射半角. 计算结果如表1所示. 从表1可以看出, 相同溅射时间下, 外加磁场后AZO薄膜普遍具有更大的晶粒尺寸, 因此外加磁场对薄膜晶粒的生长具有促进作用.

表1 外加磁场和不加磁场制备的 AZO 薄膜的晶粒尺寸、衍射峰位和半高全宽

磁场强度 /T	溅射时间 /min	2θ /(°)	FWHM /(°)	平均晶粒尺寸 /nm
0	15	34.123	0.469	19.7
0	30	34.322	0.434	21.3
0	60	34.277	0.397	23.3
0.3	15	34.226	0.392	23.5
0.3	30	34.276	0.419	22.1
0.3	60	34.274	0.400	23.2

3.2 外加磁场对 AZO 薄膜表面形貌的影响

图3是制备的AZO薄膜的表面形貌图,从图3(a)中可以看出,溅射时间为15 min时,不加磁场制备的薄膜表面呈蠕虫状,晶界模糊,薄膜质量差;溅射时间同为15 min,外加磁场后薄膜的表面晶粒大小比较均匀,晶界清晰可见且表面无异常大的颗粒,薄膜的结晶度良好(见图3(c));随着溅射时间的增加,薄膜晶粒尺寸明显增大.图3(b)和(d)分别是不加磁场和外加磁场在溅射时间为60 min时薄膜的表面形貌图,对比两图后发现,外加磁场制备的AZO薄膜表面平整致密,晶粒饱满且呈等轴晶状,而不加磁场薄膜的晶粒尺寸小、表面

致密度低、部分区域出现塌陷.

图4是制备的AZO薄膜表面形貌的AFM图.从图4可以看出,AZO薄膜表面呈竹笋状表面岛和海峡的构造,并随着溅射时间的增加,竹笋状表面岛的密度降低,海峡逐渐收缩形成孔穴.产生这一现象的原因是,溅射时间的增加,表面岛之间发生了合并,在降低竹笋状表面岛密度的同时,增大了表面颗粒的大小和表面起伏的幅度.由图4还可以看出,相同溅射时间下,外加磁场后薄膜表面岛和孔穴的构造更加明显,薄膜表面颗粒的大小明显比不加磁场沉积的薄膜表面颗粒大,加磁场后薄膜表面变得更加粗糙.溅射时间为30 min和60 min时,外加磁场和不加磁场制备的薄膜表面平均粗糙度 R_a 分别为6.97 nm, 15.9 nm和4.96 nm, 10.7 nm.

3.3 外加磁场对薄膜沉积速率的影响

图5给出了AZO薄膜的厚度随着溅射时间的变化规律.从图5中可以看出,薄膜的厚度随溅射时间的变化规律基本成线性关系,因此曲线的斜率即为薄膜的沉积速率.如图所示,外加磁场后AZO薄膜的沉积速率从不加磁场的13.04 nm/min提高到了19.93 nm/min. AZO薄膜的沉积速率除和靶基距、溅射功率、工作气压等因素有关外,还与辉光

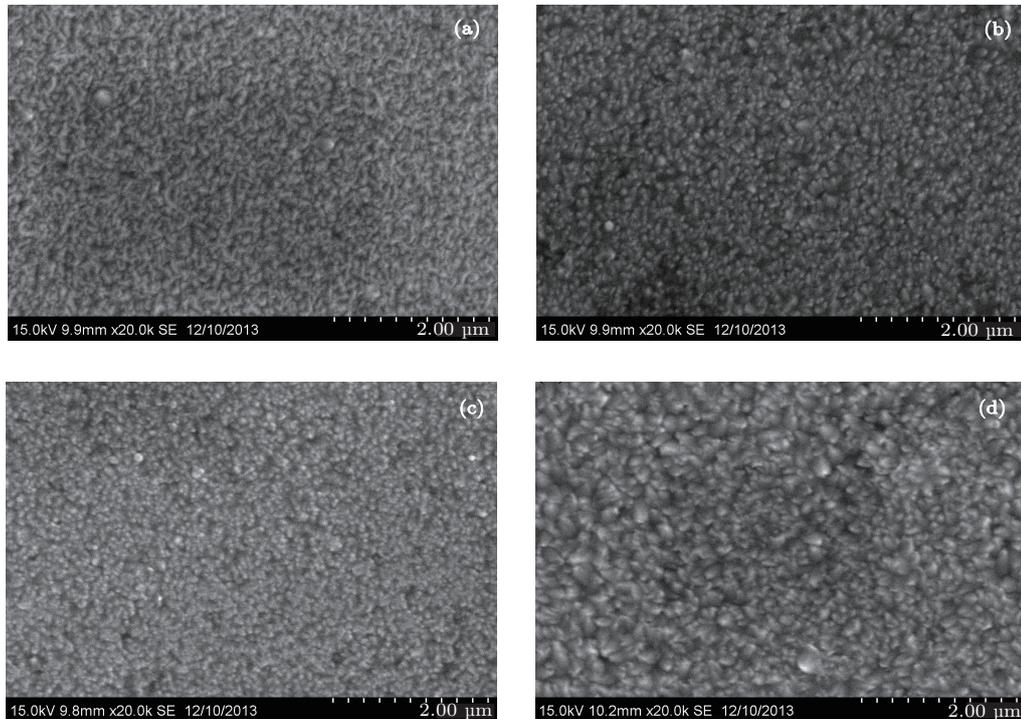


图3 AZO 薄膜样品的 SEM 形貌图 (a) 0 T, 30 min; (b) 0 T, 60 min; (c) 0.3 T, 30 min; (d) 0.3 T, 60 min

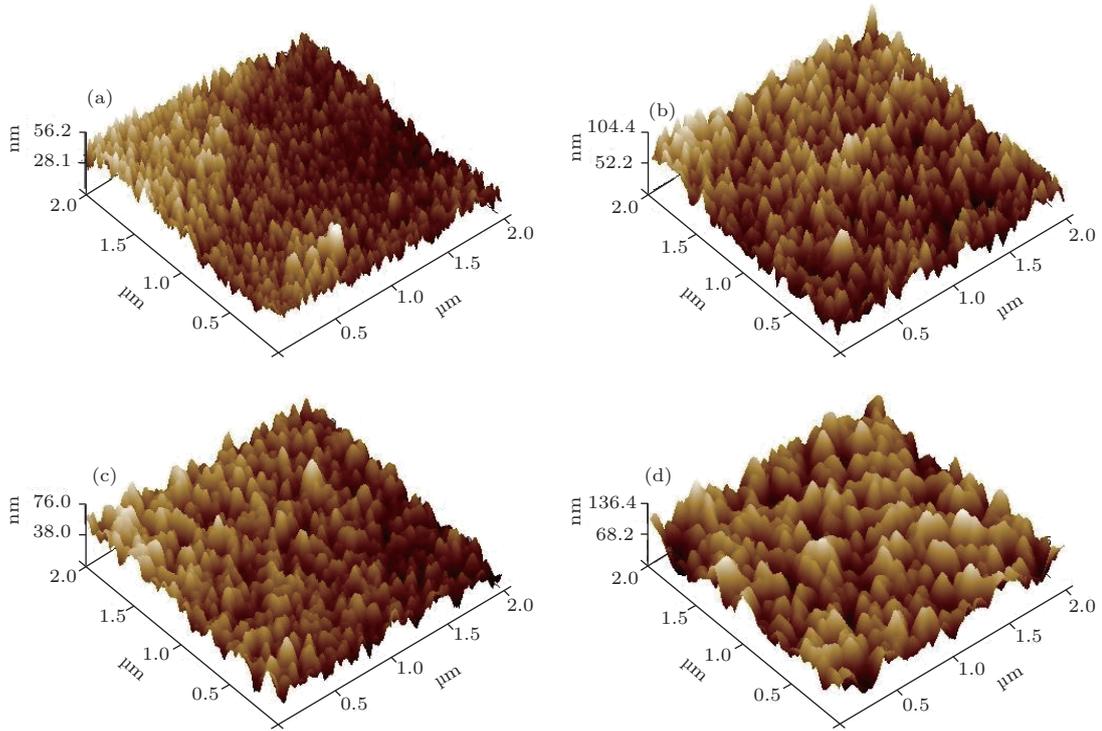


图4 AZO 薄膜样品的 AFM 形貌图 (a) 0 T, 30 min; (b) 0 T, 60 min; (c) 0.3 T, 30 min; (d) 0.3 T, 60 min

放电区域内等离子体的浓度密切相关^[15]. 本实验中, 由于靶基距、溅射功率及工作气压等工艺条件是一致的, 因此考虑引入外加磁场后增大了辉光放电区域中等离子体的浓度, 提高了 Ar⁺ 对靶材的轰击作用, 从而加快了薄膜的沉积速率.

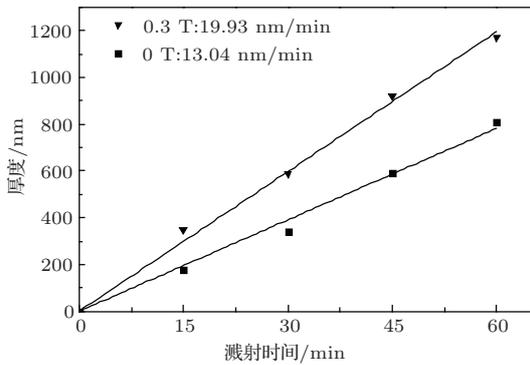


图5 AZO 薄膜的厚度随溅射时间的变化关系

3.4 外加磁场对 AZO 薄膜电学性能的影响

图6为AZO薄膜的方阻随溅射时间变化的曲线. 可以看出, 溅射时间小于1 h时, 随着溅射时间的增加, 薄膜的方阻迅速减小; 当溅射时间超过1 h时, 薄膜的方阻随溅射时间增加变化趋缓. 薄膜的厚度是影响其导电性能的重要因素, 当溅射时间较

短时, 薄膜厚度小于电子运动的平均自由程, 薄膜表面对电子的强烈散射作用是薄膜电阻较大的原因; 随着溅射时间的增加, 当薄膜厚度超过电子平均自由程时, 薄膜的电阻会接近整块材料时的值, 此时晶粒之间的接触电阻和薄膜中晶格缺陷对电子的散射作用成为影响薄膜导电性的主要因素^[16].

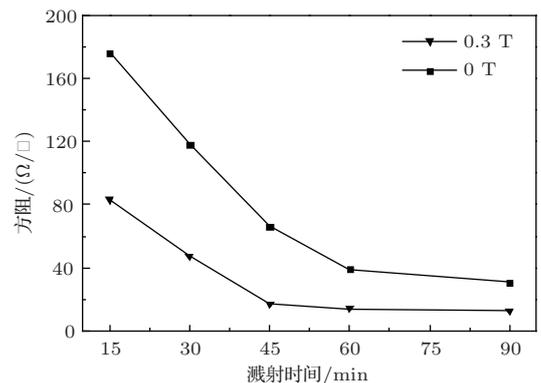


图6 AZO 薄膜的方阻随时间的变化关系

如图6所示, 溅射时间相同时, 外加磁场制备的薄膜比不加磁场制备的薄膜具有更小的电阻. 以溅射90 min为例, 外加磁场前后薄膜的方阻值分别为30.74 Ω/□和12.88 Ω/□. AZO薄膜的导电性能除和薄膜厚度密切相关外, 薄膜的表面形貌和结晶

质量同样是其重要的影响因素. 溅射工艺相同时, 外加磁场制备的薄膜厚度更大、结晶质量更高, 薄膜表面连续致密, 使薄膜表面和晶格缺陷对电子的散射作用较小, 因此薄膜具有更优良的电学性能.

3.5 AZO 薄膜的光学性能表征

图 7 为制备的 AZO 薄膜的透过率随着波长变化的曲线图. 如图所示, 由于光在空气、AZO 薄膜和载波片之间存在干涉, 透过率曲线呈现出明显的峰-谷状. 当溅射时间小于 60 min 时, 所有样品在可见光区的平均透过率均大于 85%; 当溅射时间为 120 min, 薄膜的平均透过率迅速下降到 80% 以下, 这是因为随着溅射时间增加薄厚变大, 薄膜对入射光的吸收增强, 从而造成透过率降低. 从图中可以看出外加磁场对 AZO 薄膜在可见光区的透过率影响不大, 但薄膜的透过率曲线的截至吸收限对应的波长更小, 即吸收边蓝移现象更明显, 产生这种蓝移现象的原因是 Al 掺杂使 ZnO 晶体由非简并态变为简并态, 费米能级进入导带, 要把价电子激发为自由电子, 必须要将它们激发到费米能级以上, 使禁带宽度加宽, 从而使薄膜的吸收边蓝移, 即 Burstein 移动 [17].

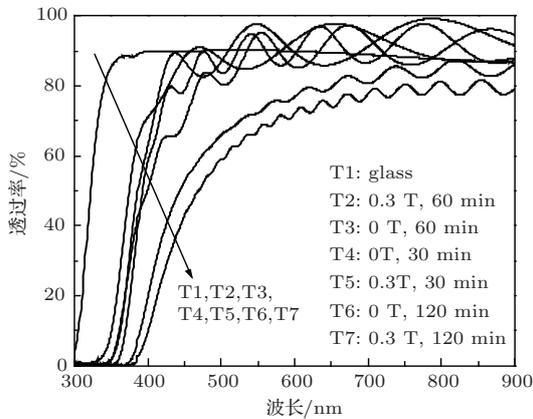


图 7 AZO 薄膜的可见光透射光谱

根据图 7 的透过光谱可求得 AZO 薄膜的带隙宽度, Tauc 等 [18] 提出了薄膜的光学带隙宽度 E_{opt} 可由下式确定:

$$(\alpha h\lambda)^2 = A(h\nu - E_{opt}), \quad (2)$$

其中 A 为常数, $h\nu$ 为入射光子能量, $\alpha = -\ln T/d$ [19] 是薄膜的吸收系数 (T 为透过率, d 为薄膜厚度). 由图 7 的透过光谱可以得出 $(\alpha h\nu)^2-h\nu$ 关系图, $(\alpha h\nu)^2-h\nu$ 曲线的直线部分外推至

$(\alpha h\nu)^2 = 0$ 处对应的 $h\nu$ 值, 即为 AZO 薄膜的光学禁带宽度值. 图 8 给出了按照 Tauc 法计算的 AZO 薄膜的带隙图. 结果显示, 样品的光学禁带宽度均已超过了本征 ZnO 的禁带宽度 (3.37 eV) [20]. 溅射时间为 30 min 和 60 min 时, 外加磁场和外加磁场制备的薄膜带隙宽度分别为 3.52 eV, 3.56 eV 和 3.47 eV, 3.53 eV, 外加磁场后薄膜具有更大的禁带宽度. Moss [21] 给出了 Burstein 移动引起的带隙宽度 E_{opt} 与载流子浓度 n_e 的关系为

$$E_{opt} = \frac{h^2}{2m^*} (3\pi^2 n_e)^{2/3} + E_{g,dir}, \quad (3)$$

式中 m^* 是折合有效质量, h 是普朗克常量, $E_{g,dir}$ 是本征 ZnO 的禁带宽度. (3) 式指出, 薄膜中电子的浓度将随着薄膜带隙宽度增大而提高, 根据电子浓度和带隙宽度之间的这一关联性可知, 外加磁场使薄膜带隙宽度变宽是基于薄膜中载流子浓度的提高, 由此同样也证实了外加磁场有助于提高薄膜的电学性能.

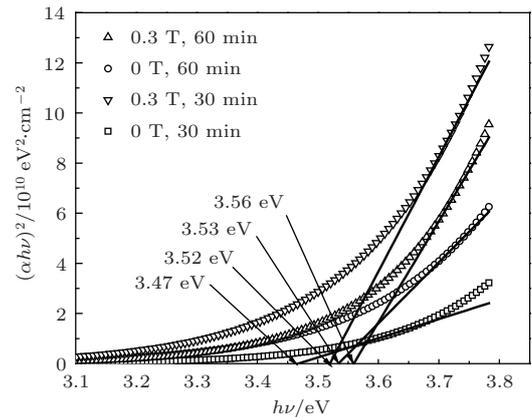


图 8 AZO 薄膜的光学带隙图

4 机理分析

4.1 磁场模拟

如实验装置示意图 1 所示, 圆形平面磁控靶是轴对称的, 磁场由放置在靶中心和边缘的永磁体产生, 靶上方任意一点的磁场 B 都可以分解为横向 B_x 和轴向的 B_y 两个分量. 平行于靶面的磁场 B_x 和垂直于靶面的电场 E 同时作用于靶面发射出的二次电子, 使其做如图 9 所示的螺旋运动 [22]. 因此横向磁场分量 B_x 是构成圆形磁控溅射靶的关键, 运用 ansys 软件模拟了外加磁场前后靶面上方水平磁场 B_x 的分布, 关于磁场模拟的方法和模拟的准

确性相关文献 [23-26] 已有说明和证实, 本文不再多做赘述.

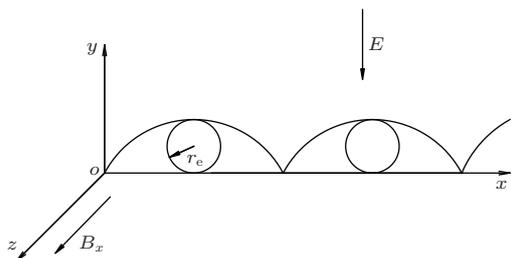


图9 正交电磁场中电子的运动轨迹

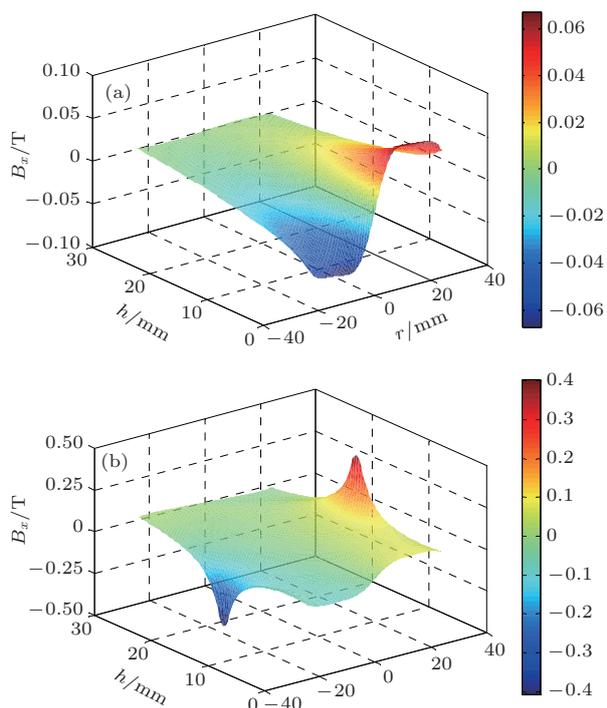


图10 (网刊彩色) 靶上方水平磁场 B_x 的分布图 (a) 0 T; (b) 0.3 T

图10是靶面上方二维空间的水平磁场 B_x 的分布图, 图中 h 是距靶材表面的高度, r 为到靶材中心的距离. 其中 (a) 为不加磁场 B_x 的分布图, (b) 为外加磁场后 B_x 的分布图. 由图10(a)可以看出 B_x 呈对称分布, 靶面位置具有最大的磁场强度, 最大值为0.067 T, 并沿着 y 轴方向成指数衰减; 图10(b)显示外加磁场并没有改变磁场分布的对称性, 靶面位置磁场强度最大值提高到了0.082 T, 并随着距靶面高度的增加 B_x 大小一直稳定在0.09 T左右, 高强磁场一直扩展到了靶材上方15 mm处, 因此外加磁场在加强了磁场对电子束缚能力的同时扩大了高能电子与 Ar 原子碰撞的区域. 图11是

靶面位置 ($h = 0$ mm) 的水平磁场强度 B_x 随 r 变化的关系图, 由图可以看出, 外加磁场和外加不加磁场靶中心处的 B_x 强度始终为零, 但在距靶中心 ± 5 mm 水平范围内, 外加磁场后 B_x 曲线变得更加陡峭, 说明外加磁场改善了 B_x 沿 r 轴方向分布的均匀性.

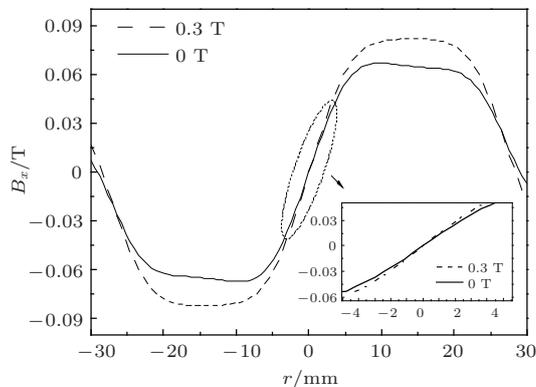


图11 靶面位置 ($h = 0$ mm) B_x 沿 r 轴方向分布图

4.2 磁场对电子运动及靶电流的影响分析

文献 [11] 给出了电子的回旋半径 r_e 和磁场强度的关系为

$$r_e = \frac{m_e V}{e B_x}, \quad (4)$$

其中 m_e 是电子质量, V 为电子垂直于靶面的出射速度. 由 (4) 式可知, 随着水平磁场强度 B_x 的增大电子回旋半径减小, 因而电子在靶面上停留的时间就越长, 电子与气体分子的碰撞概率自然提高. Kuwaha 等 [27] 认为在磁场存在的条件下, 稳态靶电流密度可以近似由下式表示:

$$\tilde{J}_i = \frac{4\epsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2e}{m_e} \frac{V_c^{3/2}}{r_e^2}}, \quad (5)$$

式中 ϵ_0 是真空介电常数, V_c 是电势. 根据 (4) 和 (5) 式可以得到 $\tilde{J}_i \propto V_c^{3/2} B_x^2$, 即在溅射功率和工作气压一定的条件下, 磁控靶电流密度将随着水平磁场 B_x 的增大而提高. 因此在阴极靶的设计中, 在临近靶面的位置, 横向磁场 B_x 应尽可能的大且分布均匀, 以增大磁场对电子的束缚能力、提高电子与 Ar 原子的碰撞概率, 由此增强气体离化率、降低气体的放电阻抗, 从而获得高的靶电流密度和均匀分布的靶电流, 也就获得了更多离子轰击靶材, 将有效地提高溅射镀膜的速率和薄膜质量.

由以上分析可知, 在传统的磁控溅射系统中引入外加磁场后, 提高了靶上方水平磁场强度, 改善

了磁场分布的均匀性, 扩大了高能电子与 Ar 原子的碰撞区域, 因此与不加磁场磁控溅射相比, 外加磁场增强了等离子体的电离度, 降低了气体放电的阻抗, 获得了更大的靶电流. 靶电流的提高, 使溅射出来的 Zn, Al, O 原子具有更高的出射动能, 原子到达基底后具有足够高的迁移能, 在提高了薄膜沉积速率的同时更容易形成结构致密、结晶质量高的 AZO 薄膜. 此外, 较高的靶电流还使原子与载能 Ar^+ 碰撞的机会增大, 而质量较小的 O 原子在碰撞后能量损失相对较大, 使 AZO 薄膜中氧空位密度增加, 氧空位增加了薄膜中载流子的浓度, 所以薄膜电阻下降^[28].

5 结 论

利用射频磁控溅射法制备了铝掺杂氧化锌 (AZO) 透明导电薄膜, 在平衡磁控溅射系统上引入外加磁场, 研究了外加磁场对 AZO 透明导电薄膜结构、形貌和光电特性的影响. XRD 衍射图谱表明: 薄膜呈 C 轴择优取向生长, 相同溅射条件下, 外加磁场后 AZO 薄膜 (002) 晶面衍射峰强度更高; SEM 表面形貌显示: 外加磁场后薄膜表面平整致密、颗粒大小均匀, 薄膜质量较高, 而不加磁场薄膜表面形貌呈蠕虫状, 结晶质量较差; AFM 测试显示, 加磁场后薄膜表面岛和孔穴的构造更加明显, 薄膜表面粗糙度变大; 溅射速率和方阻测试结果表明: 外加磁场后薄膜的沉积速率从不加磁场的 13.04 nm/min 提高到了 19.93 nm/min. 溅射时间为 90 min 时, 外加磁场前后 AZO 薄膜方阻值分别为 30.74 Ω/\square 和 12.88 Ω/\square ; 薄膜透过率分析表明: 溅射时间小于 1 h 时, 外加磁场前后薄膜的透过率差别不明显且均已超过 85%, 但是外加磁场后薄膜吸收边蓝移更明显, 产生这种蓝移的原因是基于薄膜中载流子浓度的提高. 运用 ansys 软件对磁控溅射二维磁场分布模拟后发现, 外加磁场增大了靶上方水平磁场 B_x 的强度, 改善了磁场分布的均匀性, 扩大了高能电子与 Ar 原子的碰撞区域, 与不加磁场磁控溅射相比外加磁场加强了磁场对二次电子束缚能力, 提高了气体电离率, 增大了靶电流, 从而使 AZO 薄膜的溅射速率、形貌结构和光电性能得到提高和优化.

参考文献

- [1] Wang Y F, Huang Q, Song Q G, Liu Y, Wei C C, Zhao Y, Zhang X D 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 137801 (in Chinese)[王彦峰, 黄茜, 宋庆功, 刘阳, 魏长春, 赵颖, 张晓丹 2012 物理学报 **61** 137801]
- [2] Han X, Xia H, Wu L J 1998 *Electronic Components and Materials* **17** 31 (in Chinese) [韩雪, 夏慧, 吴丽君 1998 电子元件与材料 **17** 31]
- [3] Fang Z B, Tan Y S, Liu X Q, Yang Y H, Wang Y Y 2004 *Chin. Phys.* **13** 1330
- [4] Liu X D, Liu J, Chen S, Li Z Q 2012 *Appl. Surf. Sci.* **263** 486
- [5] Wang F, Wu M Z, Wang Y Y, Yu Y M, Wu X M, Zhuge L J 2013 *Vacuum* **89** 127
- [6] Zhou B Z, Zhang H Y, Han L W, Han J C 2013 *Superlattices Microst.* **64** 563
- [7] Chen C, Ji Y, Gao X Y, Zhao M K, Ma J M, Zhang Z Y, Lu J X 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 036104 (in Chinese)[陈超, 冀勇, 郜小勇, 赵孟珂, 马姣民, 张增院, 卢景霄 2012 物理学报 **61** 036104]
- [8] Han J, Zhang P, Gong H B, Yang X M, Qiu Z W, Zi M, Cao B Q 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 216102 [韩军, 张鹏, 巩海波, 杨晓朋, 邱智文, 自敏, 曹丙强 2013 物理学报 **62** 216102]
- [9] Schuler T, Aegerter M A 1998 *Thin Solid Films* **351** 125
- [10] Chen Z Q, Liu M H, Liu Y P, Chen W, Luo Z Q, Hu X W 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4260 (in Chinese)[陈兆权, 刘明海, 刘玉苹, 陈伟, 罗志清, 胡希伟 2009 物理学报 **58** 4260]
- [11] Liang S, Mei Z X, Du X L 2012 *Chin. Phys. B* **21** 067306
- [12] Li Y Q 1992 *Vacuum Coating Technology and Equipment* (Shenyang: Northeast Institute of Technology Press) p107 (in Chinese) [李云奇 1992 真空镀膜技术与设备 (沈阳: 东北工学院出版社) 第 107 页]
- [13] Hiroshi Ikuta, Kohei Yokouchi, Isao Ohta, Yousuke Yanagi, Yoshitaka Itoh 2009 *Vacuum* **83** 475
- [14] Wang F C 2005 *Material Modern Analytical Test Methods* (Beijing: Beijing Institute of Technology Press) p93 (in Chinese) [王富耻 2005 材料现代测试分析该方法 (北京: 北京理工大学出版社) 第 93 页]
- [15] Qiu Q Q, Li Q F, Su J J, Jiao Y, Finley Jim 2009 *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology* **29** 46 (in Chinese) [邱清泉, 励庆孚, 苏静静, Jiao Yu, Finley Jim 2009 真空科学与技术学报 **29** 46]
- [16] Tian M B 2006 *Thin Film Technology and Materials* (Beijing: Tsinghua University Press) pp 219—220 (in Chinese) [田民波 2006 薄膜技术与薄膜材料 (北京: 清华大学出版社) 第 219—220 页]
- [17] Burstein E 1954 *Phys. Rev.* **93** 632
- [18] Tauc J, Grigorovici R, Vancu A 1966 *Phys. Status Solidi B* **15** 627
- [19] Kim H, Piqué A, Horwitz J S, Murata H, Kafafi Z H, Gilmore C M, Chrisey D B 2000 *Thin Solid Films* **377-378** 798
- [20] Wang Y F, Zhang X D, Huang Q, Yang F, Meng X D, Song Q G, Zhan Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 247802 (in Chinese)

- Chinese)[王延峰, 张晓丹, 黄茜, 杨富, 孟旭东, 宋庆功, 赵颖 2013 物理学报 **62** 247802]
- [21] Moss T S 1954 *Proc. Phys. Soc. London. Sect. B* **67** 775
- [22] Gao F Y, Li G, Xia Y 2010 *Transactions of Materials and Heat Treatment* **31** 153 (in Chinese) [高方圆, 李光, 夏原 2010 材料热处理学报 **31** 153]
- [23] Shen X Q, Xie Q, Xiao Q Q, Chen Q, Feng Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 165101 (in Chinese) [沈向前, 谢泉, 肖清泉, 陈茜, 丰云 2012 物理学报 **61** 165101]
- [24] Zhao Z, Zhou Y W, Liu Y 2010 *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology* **30** 265 (in Chinese) [赵卓, 周艳文, 刘悦 2010 真空科学与技术学报 **30** 265]
- [25] Zhao X M, Di G Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 306 (in Chinese) [赵新民, 狄国庆 2004 物理学报 **53** 306]
- [26] Qiu Q Q, Li Q F, Su J J, Jiao Y, Finley Jim 2008 *Vacuum* **82** 657
- [27] Kiyoshi Kuwahara, Hiroshi Fujiyama 1994 *IEEE T Plasma Sci* **22** 442
- [28] Li S Y, Fu E G, Zhang D M, Zhang G 2005 *Materials Science and Technology* **13** 643 (in Chinese) [李士元, 付恩刚, 庄大明, 张弓 2005 材料科学与工艺 **13** 643]

Influence of external magnetic field on properties of aluminum-doped zinc oxide films prepared by RF magnetron sputtering*

Chen Ming Zhou Xi-Ying[†] Mao Xiu-Juan Shao Jia-Jia Yang Guo-Liang

(School of Material Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai 201620, China)

(Received 29 December 2013; revised manuscript received 22 January 2014)

Abstract

Al-doped ZnO (AZO) transparent conductive oxide films were prepared by RF magnetic sputtering. An external magnetic field was applied to the traditional magnetron sputtering system. The influence of the external magnetic field on the crystalline structure, surface topography and photoelectric properties of the AZO transparent conductive film have been studied. XRD diffraction patterns show that under the same processing condition, the intensity of (002) diffraction peak is significantly increased with the external magnetic field, suggesting a higher degree of *c*-axis preferred orientation. Scanning electron microscope shows that the external magnetic field can enlarge the grain size and density of films; the surface topography of the AZO films deposited without an external magnetic field is wormlike. Deposition rate and square resistance test results show that in an external magnetic field, the deposition rate will increase from 13.04 nm/min to 19.93 nm/min, and the sheet resistance reduce to 12.88 Ω/\square from 30.74 Ω/\square at a sputtering time of 90 min. Optical transmittance spectra shows that the average transmittance of all the films in visible light spectrum is over 85% when the sputtering time is not more than 60 min, while the external magnetic field has little effect on the transmittance of the films, but making a larger blue shift of the absorption edge. Ansys software is used to simulate the two-dimensional magnetic field distribution above the target. Results show that the intensity of the horizontal magnetic field and the uniformity of it are improved by the external magnetic field, the secondary electrons near the target are tightly bound, leading to a much larger target current intensity. So the deposition rate, surface topography and photoelectric properties of the AZO films are improved.

Keywords: external magnetic field, magnetron sputtering, AZO, transparent conductive oxide films

PACS: 81.15.Cd, 81.05.Dz, 78.20.Bh

DOI: 10.7498/aps.63.098103

* Project supported by the Shanghai University of Engineering Science for graduate students innovation project, China (Grant No. 13KY0508), and the Top Discipline Plan for Mechanical Engineering of Shanghai Municipal Education Commission, China (Grant No. YLJX12-2).

[†] Corresponding author. E-mail: zhouxiying@smmail.cn