

# 激光脉冲沉积法在 Si(100) 上生长 *c* 轴择优取向的 LiNbO<sub>3</sub> 晶体薄膜及其性能\*

黄靖云 叶志镇 汪雷 叶龙飞 赵炳辉

(浙江大学硅材料国家重点实验室, 杭州 310027)

**摘要:** 采用激光脉冲沉积(PLD)法在 Si(100) 衬底上生长得到了完全 *c* 轴择优取向的 LiNbO<sub>3</sub>(LN) 薄膜, X 射线衍射分析表明 LN(006) 衍射峰的半峰宽为 0.35°。利用棱镜耦合器, 激光可以被耦合到 LN 薄膜中, 形成 TE 和 TM 模式的光波导。测得 LN 薄膜的折射率为 2.285, 薄膜的厚度为 0.199 μm。

**关键词:** 光波导; 钮酸锂薄膜; 激光脉冲沉积法

**PACC:** 4280L; 6855; 7865

中图分类号: TN 304.9

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2002)05-0488-04

## 1 引言

LiNbO<sub>3</sub>(LN) 晶体是一种具有优良的电光、压电和非线性光学特性的铁电材料, 广泛应用于声学、集成光学、光通信、非线性光学等领域。与 LN 体晶体相比, LN 薄膜具有许多独特的优点。LN 薄膜可以实现衬底与薄膜间陡峭的折射率界面和大的折射率差, 方便地对薄膜进行选择性的掺杂, 并且制造多层结构, 因此它可以用来设计出体积小、响应快的集成光电子器件。目前, 对 LN 薄膜的关注主要集中在光波导、光调制和声表面波等方面。为了满足这些方面的应用, 往往需要制备单晶或择优取向的多晶 LN 薄膜。LN 晶体属 3m 点群, *c* 轴择优取向的多晶 LN 薄膜和 *c* 轴取向的单晶的一阶、二阶张量相同, 三阶张量的主项相同, 即两者沿 *c* 轴方向的热释电系数、介电常数、折射率、压电系数等相同, 并且 LN 在 *c* 轴方向有最大的线性电光效应系数、光弹系数和非线性光学系数。因此, *c* 轴取向的 LN 薄膜具有广阔的应用前景。

自 80 年代末以来, 就有多种方法, 如溅射<sup>[1~3]</sup>、

金属有机物化学气相沉积(MOCVD)<sup>[4~6]</sup>、sol-gel<sup>[7~9]</sup> 和激光脉冲沉积(PLD)<sup>[10~12]</sup> 等, 用来在蓝宝石、LiTaO<sub>3</sub>、MgO、硅等衬底上生长得到了 *c* 轴取向的 LN 薄膜。由于硅是半导体微电子工业的基石, 在硅衬底上生长 LN 薄膜与目前的半导体工艺兼容, 有利于光电子集成, 因而具有重要的意义。

PLD 是生长 LN 薄膜最常用的方法之一, 它最大的优点在于能使薄膜和靶的成分保持一致。近十年来, 许多课题研究者对用 PLD 生长 LN 薄膜进行了研究。本文用 PLD 法在 Si(100) 衬底上生长得到了结晶度较好的 *c* 轴完全择优取向的 LN 薄膜, 并获得了 TE 和 TM 模式的光波导。

## 2 实验过程

本文 PLD 装置如图 1 所示。使用激光波长为 248 nm 的 KrF 激光器作为光源, 激光单脉冲能量为 260~280 mJ。LN 靶用物质的量之比为 1:1 的 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 和 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 在 1190℃ 烧结而成。与以前的大部分研究相比, 没有采用富锂靶。衬底选用 P 型 Si(100) 75 mm 单面抛光片, 厚度为 450 μm, 电阻率为

\* 国家自然科学基金重大研究规划资助项目(编号: 90101009)

黄靖云 男, 1967 年出生, 副教授, 从事半导体薄膜与器件研究。

2001-09-08 收到, 2001-11-11 定稿

©2002 中国电子学会

20~35Ω·cm。在生长 LN 薄膜前, 硅片表面用热氧化法氧化一层 1.5μm 非晶 SiO<sub>2</sub> 作为光波导的包层。生长过程在氧气气中进行, 氧气压强为 30Pa, 衬底温度为 600℃, 衬底和靶之间的距离约为 4cm。

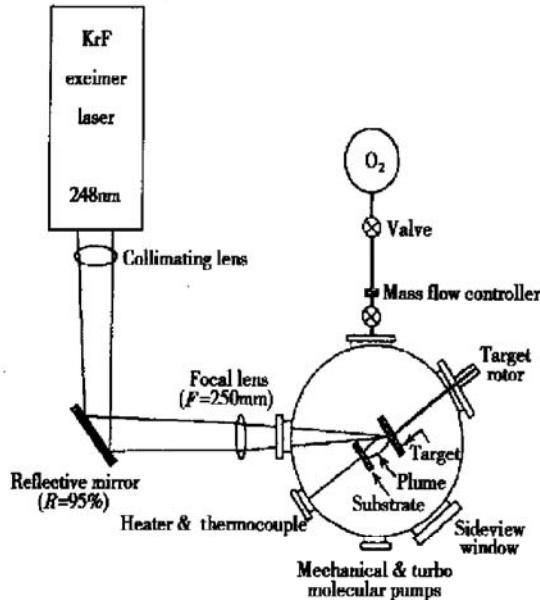


图 1 PLD 的设备装置图

Fig. 1 Equipment sketch of pulse laser deposition

### 3 实验结果和讨论

#### 3.1 LN 薄膜的择优取向和结晶度

用 XRD 来分析薄膜的择优取向性和结晶的情况, 生长得到的样品的 XRD 图谱如图 2 所示。图中出现的衍射峰只有 Si(400) 和 LN(006), 这表明我们生长得到了完全 c 轴择优取向的 LN 薄膜。并且 LN(006) 衍射峰很尖锐, 它的半峰宽约为 0.35°, 说明 LN 薄膜具有良好的结晶质量。

这个结果对于生长 LN 薄膜是一个很大的进展。首先, 由于硅衬底表面生长了一层非晶 SiO<sub>2</sub>, 在非晶 SiO<sub>2</sub> 界面上很难生长完全 c 轴择优取向的 LN 薄膜。很多研究采用缓冲层或者在生长过程中施加诱导电场以得到完全 c 轴择优取向的 LN 薄膜<sup>[3, 12]</sup>。常用的缓冲层有 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、LiTaO<sub>3</sub>、MgO、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 等, 这些缓冲层的结构与 LN 的晶体结构比较相近, 因而容易得到 c 轴择优取向的 LN 薄膜。施加诱导电场是一种十分巧妙的办法, 在薄膜生长过程中, 晶粒及晶胞在其自发极化矢量 **P** 和外加电场 **E** 平行时将是最稳定的, 因此, 在衬底上施加垂直于衬底的电场

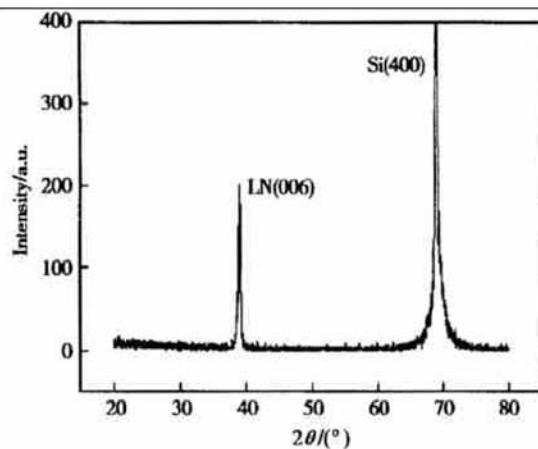


图 2 在硅衬底上生长 LN 薄膜的 XRD 图谱

Fig. 2 X-ray diffraction spectrum of the LN films on silicon substrate

有利于生长 c 轴择优取向的 LN 薄膜。但是, 采用以上两种方法有一些不足之处, 由于常用的缓冲层的折射率都比 SiO<sub>2</sub> 大, 引入缓冲层往往降低了衬底和薄膜间大折射率差的优势, 而在生长过程中施加诱导电场通常不是很方便。不采用这两种方法生长出完全 c 轴择优取向的 LN 薄膜的报道只见过一篇, 是 Lee 和 Feigelson 用 MOCVD 法生长的<sup>[6]</sup>, 但是他们得到的 LN 薄膜结晶度不是很好, LN(006) 的半峰宽为 1.8°。我们不采用缓冲层和施加诱导电场的办法, 用 PLD 法首次在硅衬底上生长得到了结晶质量良好的 LN 薄膜。其次, 普遍认为, 在非晶衬底上生长择优取向的薄膜时, 表面能最小的晶面往往优先生长。LN 晶体的解理面为 {012}, 因此 {012} 晶面具有最小的表面能。曾有过报道生长出了 (012) 择优取向的 LN 薄膜<sup>[13]</sup>, 但我们没有得到该方向择优取向的 LN 薄膜。在非晶 SiO<sub>2</sub> 界面上生长得到完全 c 轴取向的 LN 薄膜的机理仍不清楚。

#### 3.2 LN 薄膜的光波导

用棱镜耦合器对 LN 薄膜的光学性能进行测试, 测量装置的原理图如图 3 所示, 其中 A 为 LN 薄膜。光源采用 He-Ne 激光器, 激光波长为 0.6238μm, 通过旋转棱镜改变激光的入射角。如果薄膜的质量较好, 并满足光波导的条件, 那么在一定角度  $\alpha_m$  的条件下, 入射激光的一部分能量就可能被棱镜耦合到薄膜中, 并在薄膜中进行传播, LN 薄膜起光波导作用。通过探测反射光线的强度变化并测量相应的入射角, 我们可以得到在 45.60° 和 45.63°

的角度下,激光部分能量进入 LN 薄膜,进一步计算出薄膜的折射率和厚度这两个薄膜光波导的关键参数.

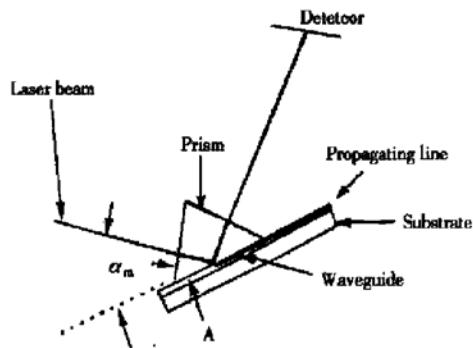


图 3 LN 薄膜光波导测试装置原理图

Fig. 3 Principle diagram of measuring LN film optical waveguide

利用以上方法测得的结果如图 4、5 所示, 分别对应 TM 模式和 TE 模式的薄膜光波导. 从图中可以得到, 在相应角度下, 激光可以被耦合到薄膜中, 并形成 TM 模式( $45.60^\circ$ ) 和 TE 模式( $45.63^\circ$ ) 的光波导, 这表明我们在硅衬底上生长的 LN 薄膜可以应用于薄膜光波导领域. 通过计算机处理, 我们可以计算出薄膜的厚度为  $0.199\mu\text{m}$ ,  $n_0 = 2.285$ . LN 体单晶的折射率为 2.296, 该薄膜的折射率与 LN 体单晶相应的折射率接近, 表明我们生长得到的 LN 薄膜的质量较好, 而产生偏差的原因可能在于 LN 薄膜的折射率要略小于体材料的折射率, 另外可能与 LN 薄膜中存在缺陷、晶格扭曲、局部取向偏差等因素有关.

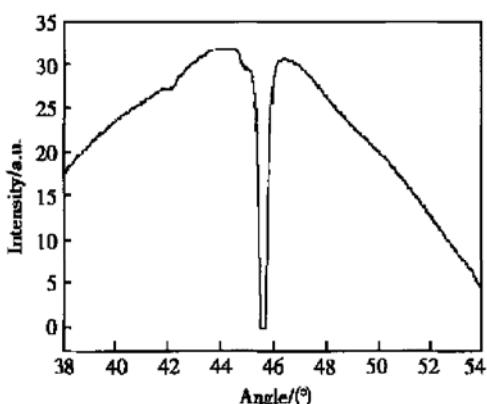


图 4 LN 薄膜中形成的 TM 模式光波导

Fig. 4 TM mode optical waveguide in the LN films

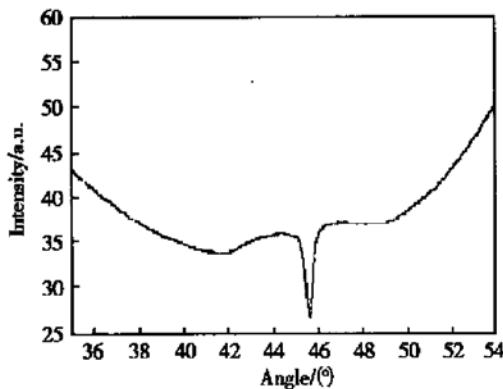


图 5 LN 薄膜中形成的 TE 模式光波导

Fig. 5 TE mode optical waveguide in the LN films

## 4 结论

用 PLD 法在 Si(100) 衬底上生长得到了完全  $c$  轴择优取向的 LN 薄膜, 薄膜的结晶质量良好, LN (006) 的半峰宽为  $0.35^\circ$ . 这是首次报道不采用缓冲层和诱导电场在硅衬底上生长出结晶质量良好的完全  $c$  轴择优取向的 LN 薄膜. 利用棱镜耦合器, 激光可以被耦合到 LN 薄膜中, 可以形成 TE 和 TM 模式的光波导. 为研制硅基 LN 光波导器件奠定了基础. 通过这种方法可以测出 LN 薄膜的折射率  $n_0$  为 2.285, 薄膜的厚度为  $0.199\mu\text{m}$ .

## 参考文献

- [1] Shimizu M, Furushima Y, Nishida T, et al. Preparation and optical waveguide properties of LiNbO<sub>3</sub> thin films by RF magnetron sputtering. Jpn J Appl Phys, 1993, 32: 4111
- [2] Nishida T, Shimizu M, Horiuchi T, et al. Electrical properties of LiNbO<sub>3</sub> thin films by RF magnetron sputtering. Jpn J Appl Phys, 1995, 34: 5113
- [3] Tan S, Gilbert T, Hung C Y, et al. Sputter deposited  $c$ -oriented LiNbO<sub>3</sub> thin films on SiO<sub>2</sub>. J Appl Phys, 1996, 79: 3548
- [4] Lu Z, Hiskes R, Dicarolis S A, et al. Epitaxial LiNbO<sub>3</sub> thin films on sapphire substrates grown by solid source MOCVD. J Mater Res, 1994, 9: 2258
- [5] Feigelson R S. Epitaxial growth of lithium niobate thin films by the solid source MOCVD method. J Cryst Growth, 1996, 166: 1
- [6] Lee S Y, Feigelson R S.  $C$ -axis lithium niobate thin film growth on silicon using solid-source metalorganic chemical vapor deposition. J Mater Res, 1999, 14: 2662
- [7] Nashimoto K, Cima M J, McLntyre P C, et al. Microstructure development of sol-gel derived epitaxial LiNbO<sub>3</sub> thin films. J Mater Res, 1995, 10: 2564

- [ 8 ] Won Dong Hoon, Hur Nam Hwi, No Kwangsoo. Effects of sol-gel precessing variables on the texture growth of LiNbO<sub>3</sub> thin films. *Jpn J Appl Phys*, 1996, 35: 210
- [ 9 ] Yoon Jonggul, Kim Kun. Growth of highly textured LiNbO<sub>3</sub> thin films on Si with MgO buffer layer through the sol-gel process. *Appl Phys Lett*, 1996, 68: 2523
- [ 10 ] Lee S H, Noh T W, Lee J H. Low-temperature growth of epitaxial LiNbO<sub>3</sub> films on sapphire (0001) substrate using pulsed laser deposition. *Appl Phys Lett*, 1995, 68: 472
- [ 11 ] Liu Z G, Hu W S, Guo X L, et al. Low biased voltage induced textured growth of LiNbO<sub>3</sub> films on silicon wafer. *Appl Surf Sci*, 1997, 109: 520
- [ 12 ] Hu W S, Liu Z G, Hu Z C, et al. Pulsed laser deposition of (001) textured LiNbO<sub>3</sub> films on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si substrate. *Appl Surf Sci*, 1999, 141: 197
- [ 13 ] Park S K, Baek M S, Bae S C, et al. (012) preferred orientation of LiNbO<sub>3</sub> thin films by RF-magnetron sputtering. *Jpn J Appl Phys*, 1999, 38: 4167

## Growth and Characterization of *c*-Orient LiNbO<sub>3</sub> Films on Si(100) by Pulse Laser Deposition\*

Huang Jingyun, Ye Zhizhen, Wang Lei, Ye Longfei and Zhao Binghui

*(State Key Laboratory of Silicon Materials, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)*

**Abstract:** Fully *c*-orient LiNbO<sub>3</sub>(LN) films are grown on Si(100) or SiO<sub>2</sub> substrate by pulse laser deposition (PLD), and the full width at half maximum of the LN (006) diffraction is only 0.35° by X-ray diffraction. Laser can be coupled into the LN film by prism coupler and the TE or TM mode optical waveguide is formed. By this method, the refractive index  $n_0$  (2.285) and thickness (0.199μm) of the film are determined.

**Key words:** optical waveguide; LiNbO<sub>3</sub> film; pulse laser deposition

**PACC:** 4280L; 6855; 7865

**Article ID:** 0253-4177(2002)05-0488-04

\* Project supported by National Natural Science Foundation of China(No. 90101009)

Huang Jingyun male, was born in 1967, associate professor. He is engaged in the research on semiconductor films and devices.

Received 8 September 2001, revised manuscript received 11 November 2001

© 2002 The Chinese Institute of Electronics