

用喷雾热分解法制备 MgO 薄膜

武光明¹ 符晓荣² 宋世庚³ 林成鲁²

(1. 北京石油化工学院 2. 中国科学院上海冶金所信息功能材料国家重点实验室 3. 新疆物理所)

摘 要 用压缩空气式喷雾热分解法在 Si(100) 衬底上制备了 (100) 取向 MgO 薄膜。结果表明, 衬底温度和喷雾速率是制备 (100) 取向 MgO 薄膜的关键因素。在 600 ℃ 得到了 (100) 取向的 MgO 薄膜, 用 X 射线衍射 (XRD)、原子力显微镜 (AFM) 和透射电镜 (TEM) 分析了薄膜的微观结构。

关键词 氧化镁 薄膜 喷雾热分解

分类号 TB383

文章编号 1005-3093(2000)01-0072-04

SIMPLE SPRAY PYROLYSIS APPROACH TO PREPARE MgO THIN FILMS

WU Guangming^{1*} FU Xiaorong² SONG Shigeng³ LIN Chenglu²

(1. *Beijing Institute of Petrochemical Technology, Beijing 102600*

2. *National Key Laboratory of Functional Materials for Informatics,*

Shanghai Institute of Metallurgy, The Chinese Academy of Science

3. *Xinjiang Institute of Physics*)

ABSTRACT (100) oriented MgO thin films have been successfully prepared on Si substrate by a simple spray pyrolysis method started from magnesium acetate. The results indicated that substrate temperature and deposition rate were key factors for growing MgO films, and (100) oriented MgO films were obtained when the substrate temperature and the flow rate of O₂ was 600 ℃ and 2.5L/min, respectively. In addition, the microstructure of the MgO thin films were examined with X-ray diffraction(XRD), transmission electron microscopy(TEM) and atomic force microscopy(AFM).

KEY WORDS MgO, thin film, spray pyrolysis

MgO 薄膜作为制备高温超导体和铁电薄膜的稳定阻挡层引起了人们广泛的兴趣^[1,2]。MgO 在高温下具有很好的化学稳定性、热传导性和绝缘性, 其晶格常数与 Si、Pt、铁电或超导材料很接近, 是一种优良的衬底材料。在 (100) 或 (111) 取向的 MgO 薄膜上可生长出性能优良的超导薄膜^[1,3] 或铁电薄膜等^[4~6]。制备 MgO 薄膜的方法有激光脉冲沉积^[1,7]、电子束蒸发^[8,9]

1999年1月13日收到初稿; 1999年6月24日收到修改稿。

本文联系人: 武光明, 北京市 102600, 北京石油化工学院基础部

* To whom correspondence should be addressed

以及化学气相沉积^[10,11]等. 本文采用喷雾热分解法制备 MgO 薄膜. 喷雾热分解法多以超声雾化器为雾化装置^[12,13], 本文采用压缩空气雾化器制备 (100) 取向的 MgO 薄膜.

1 实验方法

将适量 $\text{Mg}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 溶于乙二醇甲醚中, 加入少量冰醋酸稳定溶液, 加热搅拌 20min 后, 静置, 得 MgO 喷雾溶液. 在制备 MgO 的先驱溶液时, 需加入一定的冰醋酸以稳定溶液.

选用 (100)Si 作为衬底, 将衬底放入反应室并加热到不同的实验温度 (380~600 °C 之间), 温度恒定后开始喷雾. 以氧气为载气, 流量为 2.5~3.5L/min, 衬底与喷嘴之间的距离为 7cm. 喷镀 1h, 待薄膜冷却至 250 °C 取出. 采用压缩空气雾化器制备 MgO 薄膜 (图 1).

用 X 射线衍射 (XRD) 测定薄膜的结构, 用原子力显微镜 (AFM) 和透射电镜 (TEM) 观察薄膜的表面及断面形貌. 用 ASR-100C/2 扩展电阻测试仪测定薄膜的绝缘特性和厚度.

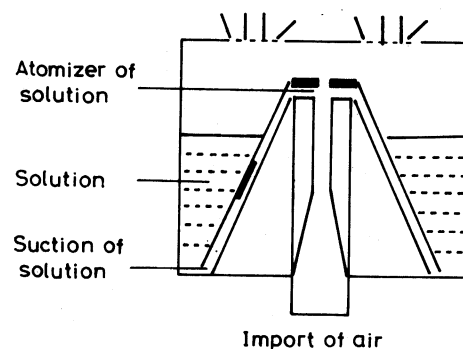


图 1 压缩空气雾化器装置

Fig.1 Structure of air-compressed ultrasonic humidifier

2 结果与讨论

2.1 衬底加热温度对薄膜结构的影响

从图 2 可见, 衬底温度影响薄膜的结构. 当衬底的温度为 380 °C 时, 出现较弱的 (100) 衍射峰和 (111) 的非晶峰, 表明薄膜已开始晶化. 随着衬底的温度升高, 薄膜的 (100) 和 (111) 衍射峰增强. 当衬底温度为 600 °C 时, 薄膜出现 (100) 择优取向. 衬底加热温度也影响薄膜沉积速率. 氧气流量为 2.5L/min, 沉积时间为 1h: 衬底温度为 380 °C, 没有 MgO 薄膜形成; 衬底温度为 470 °C, 薄膜厚度约为 0.18 μm ; 衬底温度为 600 °C, 薄膜的厚度为 0.28 μm . 薄膜的厚度是根据扩展电阻的结果 (图 3) 估算的.

图 4 显示, 衬底温度为 380 °C、470 °C、540 °C 和 600 °C, MgO 薄膜的晶粒尺寸分别约为 1、5、10 和 10nm, 而且薄膜很均匀、致密, 薄膜的平均粗糙度 (average roughness) 分别为 2.65nm、6.54nm、6.96nm 和 11.8nm. 可见, 沉积温度提高使薄膜的晶粒尺寸增大.

图 5 是沉积温度为 600 °C 时 MgO 薄膜的 TEM 照片, 从图 5a 可见, 薄膜厚度均匀、平坦, 约为 0.25 μm , 这与扩展电阻的测试结果较接近. 而且 MgO 薄膜与 Si 衬底间的界面很清晰, 基本没有互扩散反应. MgO 薄膜的扩展电阻测试结果也反映出在膜区域, 阻值很高, 平台平坦, 表明材料的电导率低, 电阻值分布均匀. 这可进一步理解为薄膜的成分均匀. 图 5b 表明 MgO 薄膜为具有一定织构的多晶体.

2.2 氧气流量对 MgO 薄膜结构的影响

图 2 表明, 当衬底加热温度为 600 °C, 氧气流量 F_{O_2} 为 2.5L/min 时, 薄膜为 (100) 择优取向; 但当 F_{O_2} 增至 3.5L/min 时, 薄膜为多晶结构. 关于 MgO 薄膜在 Si(100) 衬底上的生长过

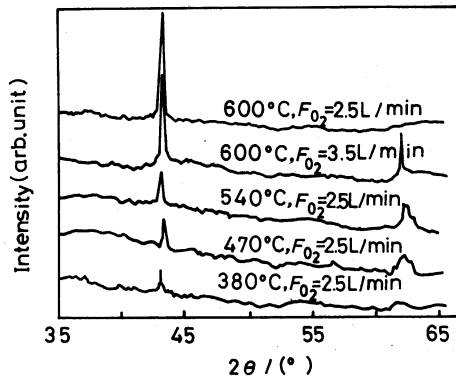


图 2 MgO 薄膜的 XRD 图谱

Fig.2 XRD patterns of MgO films deposited at different substrate temperature and flow rate of oxygen

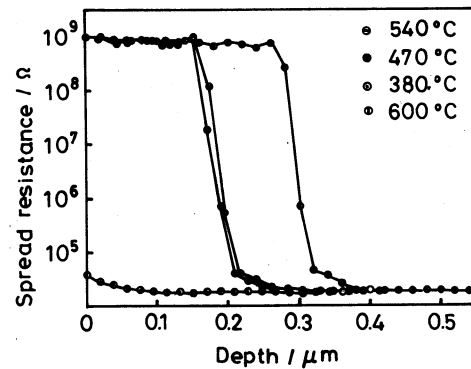


图 3 MgO 薄膜的扩展电阻

Fig.3 Spread resistance patterns of MgO films deposited at different temperature

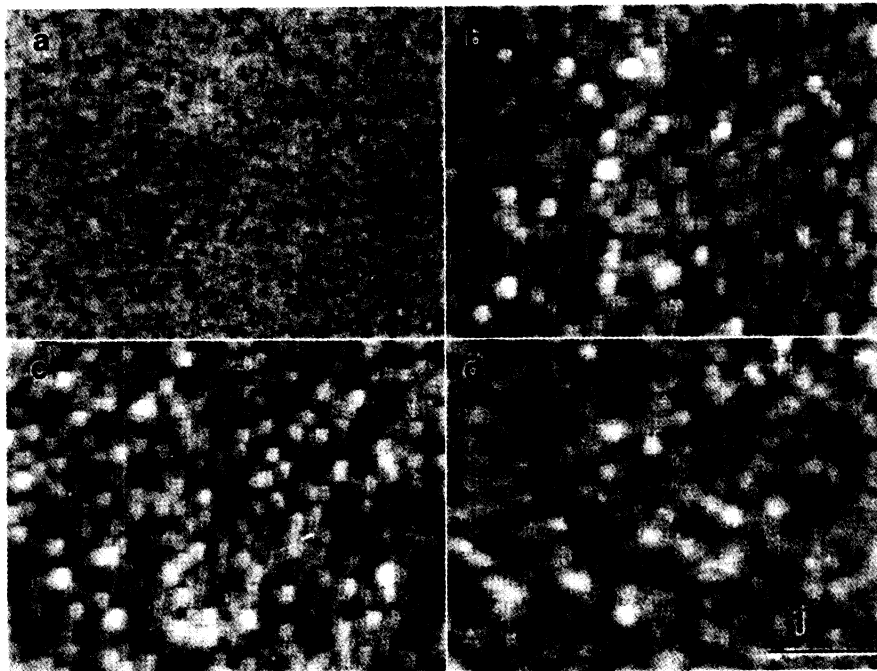


图 4 在不同衬底温度下沉积的 MgO 薄膜的 AFM 图

Fig.4 AFM plain-views of MgO films deposited at different substrate temperature
(a)380 °C; (b)470 °C; (c)540 °C; (d)600 °C

程已有一些研究 [11,14~17], 有人认为 MgO 薄膜的取向性生长和衬底表面结构有关, 这可能是由于薄膜的表面扩散、MgO 薄膜与氢氧化物发生反应或是反应前衬底表面被氧化等因素,

造成 MgO 薄膜取向性的改变. 在氧气流量较低 ($F_{O_2}=2.5\text{L}/\text{min}$) 时, 反应物分子在薄膜表面可以进行充分的迁移过程, 从而得到稳定的 (100) 取向的 MgO 薄膜; 而当氧气流量较高时 ($F_{O_2}=3.5\text{L}/\text{min}$), 在薄膜表面就不会发生充分的迁移过程, 便得到结构相对不稳定的 (111) 取向的 MgO 薄膜, 它具有较 (100) 取向低的原子密度. 减小氧气流量使少量的反应物分子到达衬底表面, 它们在衬底表面具有很高的迁移速率, 从而得到 (100) 取向的 MgO 薄膜.

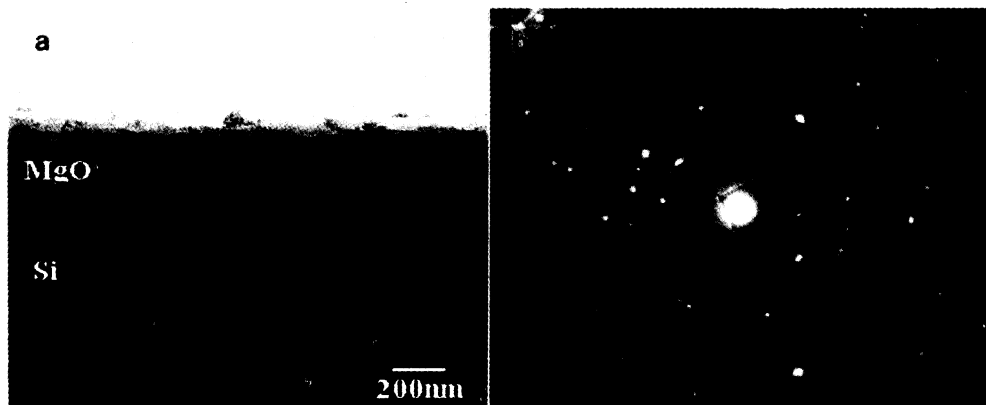


图 5 MgO 薄膜的 TEM 图

Fig.5 TEM image of MgO film deposited at substrate temperature of 600 °C

(a) cross-sectional microscopy; (b) electron diffraction pattern

3 结 论

衬底温度和氧载气流量是制备 (100) 取向 MgO 薄膜的关键因素. 衬底温度为 600 °C、氧载气流量为 2.5L/min, 得到 (100) 择优取向的 MgO 薄膜.

参 考 文 献

- 1 D.K.Ford, F.A.Ponce, J.C.Tramontana, T.H.Geballe, Appl.Phys.Lett., **58**, 2294(1991)
- 2 W.Y.Hsu, R.Raj, Appl.Phys.Lett., **60**, 3105(1992)
- 3 W.J.DeSisto, R.L.HenryL, J.Cryst.Growth, **109**, 314(1991)
- 4 S.Kim, S.Hishita, Thin Solid Films, **282**, 449(1996)
- 5 J.Senzaki, O.Mitsunaga, T.Uchida, T.Ueno, K.Kuroiwa, Jpn. J.Appl.Phys., **35**, 4195(1996)
- 6 J.G.Yoon, K.Kim, Appl.Phys.Lett., **60**, 2523(1992)
- 7 E.J.Tarsa, M.D.Graef, D.R.Clarke, A.C.Gossard, J.S.Speck, J.Appl.Phys., **73**, 3276(1993)
- 8 L.S.Huang, L.R.Zheng, T.N.Blanton, Appl.Phys.Lett., **60**, 3129(1992)
- 9 A.Masuda, K.Nashimoto, Jpn.J.Appl.Phys., **33**, L793(1994)
- 10 B.S.DwaK, E.P.Boyd, K.Zhang, A.Erbil, B.Wilkins, Appl.Phys.Lett., **54**, 2542(1995)
- 11 R.Huang, A.H.Kitai, Appl.Phys.Lett., **61**, 1450(1992)
- 12 O.Stryckmans, T.Segato, P.H.Duvigneaud, Thin Solid Films, **283**, 17(1996)
- 13 Y.Xie, W.Z.Wang, Y.T.Qian, L.Yang, Z.W.Chen, Surf.Coatings Technol., **82**, 291(1996)
- 14 J.G.Yoon, K.Kim, Appl.Phys.Lett., **66**, 2661(1995)
- 15 A.Rywak, J.M.Burlitch, T.M.Loehr, Chem.Mater., **7**, 2028(1995)
- 16 Ho In-Chyuan, Y.H.Xu, J.D.Mackenzie, J.Sol-Gel.Sci.Technol., **9**, 295(1997)
- 17 Y.Kaneko, N.Mikoshiha, T.Yamashita, Jpn.J.Appl.Phys., **30**, 1091(1991)