

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПЛЕНОК ДИОКСИДА КРЕМНИЯ В КАЧЕСТВЕ АНТИОТРАЖАЮЩЕГО ПОКРЫТИЯ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ОДНОФОТОННОГО ДЕТЕКТОРА

А.А. КУЗАНЯН*, С.И. ПЕТРОСЯН, А.С. КУЗАНЯН, Г.Р. БАДАЛЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: astghik.kuzanyan@gmail.com

(Поступила в редакцию 15 апреля 2020 г.)

Антиотражающие слои являются важной частью чувствительных элементов высокоэффективных однофотонных детекторов. Методом электронно-лучевого напыления на подложках Al_2O_3 , AlN , Si и покрытиях CeB_6 , LaB_6 и W нами получены аморфные пленки диоксида кремния. Исследованы элементный состав, микроструктура и шероховатость поверхности, оптические характеристики образцов, полученных при различных условиях напыления. Показано, что двухслойные покрытия $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ и SiO_2/AlN могут обеспечить высокую эффективность детектирования при регистрации излучения в ближней ИК области, которое используется в телекоммуникационных системах и устройствах квантовой обработки информации.

1. Введение

Антиотражающие покрытия находят широкое применение в оптической промышленности, солнечной энергетике, микроэлектронике, производстве военной техники, телекоммуникационной промышленности, квантовых системах и устройствах. Одним из таких устройств являются однофотонные детекторы, которые используются в различных областях современной науки и техники: фотонике, астрофизике, лазерной спектроскопии, физике высоких энергий, квантовой криптографии, метрологии, медицинском приборостроении и так далее [1]. Важнейшими характеристиками однофотонного детектора являются скорость счета, энергетическое разрешение, эффективность детектирования, спектральный диапазон детектирования и рабочая температура [2,3]. В настоящее время рекордными характеристиками обладают сверхпроводящие нанопроволочные однофотонные детекторы (SNSPD – superconducting nanowire single photon detector) [4–6]. Исходя из результатов компьютерного моделирования можно утверждать, что конкурентом сверхпроводящим однофотонным детекторам в недалеком будущем станет термоэлектрический детектор (TSPD – thermoelectric

single-photon detector), концепцию которого предложили армянские и американские ученые в 2000 году [7,8]. Преимуществами TSPD являются простота конструкции чувствительного элемента и нежесткие требования к рабочим условиям.

В предыдущих работах мы рассмотрели в качестве материала термоэлектрического сенсора соединения CeB_6 , $(\text{La}, \text{Ce})\text{B}_6$ и FeSb_2 , а в качестве поглотителя и теплоотвода – W , Pb , Nb , YBCO . Однослойные и трехслойные чувствительные элементы TSPD из этих материалов обеспечивают высокое энергетическое разрешение и высокую скорость счета [9–14]. Для увеличения эффективности детектирования в качестве поглотителя был рассмотрен LaB_6 и была предложена четырехслойная конструкция чувствительного элемента TSPD [15–17]. Полученные результаты позволяют утверждать, что TSPD может обеспечить терагерцовую скорость счета, энергетическое разрешение не менее 1% и эффективность детектирования на уровне 90% в широком диапазоне электромагнитного спектра.

Для применения однофотонных детекторов в телекоммуникационных системах, устройствах квантовой обработки информации, использующих излучение ближней ИК области, требуется обеспечить эффективность детектирования выше 90%. Увеличить эффективность детектирования можно увеличением оптической связи излучения и чувствительного элемента детектора, что возможно с помощью антиотражающего слоя. В некоторых конструкциях сверхпроводящих детекторов ИК излучения в качестве антиотражающего слоя используется SiO_2 покрытие [18–20].

Тонкие пленки SiO_2 широко применяются в оптоэлектронике [21], полупроводниковых приборах [22], телекоммуникационных системах [23] и так далее. Пленки SiO_2 имеют низкий показатель преломления, низкое поглощение, низкое рассеяние и используются в качестве слоя с низким показателем преломления в оптических системах, таких как интерференционные фильтры, зеркала, и др. [24,25] а также для увеличения оптического пропускания и минимизации потерь энергии в солнечных коллекторах [26]. Пленки SiO_2 получают ионно-лучевым распылением (IBS) [27], напылением с помощью ионного пучка (IBAD) [28], молекулярно-лучевой эпитаксией (MBE) [29], магнетронным распылением (MS) [30], химическими методами (CVD, PECVD) [31] и реактивным импульсным лазерным напылением (RPLD) [32]. Этими методами синтезированы как аморфные, так и кристаллические пленки с различными оптическими характеристиками. Целью данной работы являлось изучение возможности создания многослойного чувствительного элемента TSPD с SiO_2 антиотражающим слоем. Пленки SiO_2 были нами получены при различных условиях на различных подложках и покрытиях методом электронно-лучевого напыления (EBPVD).

2. Эксперимент

Напыление пленок SiO_2 проводилось на вакуумной установке ВУ-1А, оснащенной электронной пушкой с энергией электронного пучка 6 кэВ. Вакуум в камере напыления перед началом процесса был на уровне 10^{-5} торр. Во всех процессах напыления использовались мишени из кристаллического кварца с 99.9% содержанием основного вещества. Пленки напылялись на подложки с площадью поверхности $10 \times 10 \text{ мм}^2$ из сапфира (Al_2O_3), кремния (Si) и нитрида алюминия (AlN) с шероховатостью (Ra) в пределах 2–5 нм, 4–10 нм и 19–25 нм соответственно. Температура подложек в процессе напыления составляла 290°C и контролировалась с помощью хромель-копелевой термопары. Пленки SiO_2 напылялись также на полученные ранее пленки вольфрама (W), гексаборидов лантана (LaB_6) и церия (CeB_6) с шероховатостью меньше 20 нм.

Толщина пленок и шероховатость образцов измерялась с помощью профилометра Ambios Technology XP-1. Вертикальное разрешение профилометра при перепаде измеряемых высот до 10 мкм составляло 0.1 нм. Толщина пленок определялась по пяти измерениям с последующим усреднением. Отклонение от среднего значения толщины пленок не превышало $\pm 5\%$.

Микроструктура поверхности и элементный состав образцов исследовались с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) VEGA TS5130MM, оснащенного системой энергодисперсионного рентгеновского микроанализа INCA Energy 300. Оптические спектры отражения измерялись при комнатной температуре на спектрофотометре СФ-8 с приставкой зеркального отражения. Коэффициент отражения определялся с точностью 0.01 во всем диапазоне измерений 1–2 мкм.

3. Результаты и их обсуждение

В табл.1 приведены параметры процесса напыления пленок SiO_2 : ток эмиссии (I_E), ток катода (I_C), длительность процесса (t), расстояние мишень-подложка (d) и скорость напыления (V). Скорость напыления рассчитывалась по средней толщине пленок данного напыления.

Табл.1. Параметры напыления пленок SiO_2

№	I_E , мА	I_C , А	T , мин	d , см	V , нм/мин
SiO1	60	19	3	16	2133
SiO2	100	20	~1	64	250
SiO3	>100	24	~1	50	440

В держателе подложек располагались по 4 образца в 3 рядах. В результате каждого напыления получалось 12 образцов. Используемая маркировка образцов включает номер процесса напыления (SiO1-SiO3), номер образца в ряду держателя (a-d) и номер ряда (1–3). Пленки напылений SiO2 и SiO3 практически прозрачные, а пленки напыления SiO1 слегка матовые, все пленки имеют гладкую поверхность. Профиль поверхности пленок SiO₂, напыленных на подложку Al₂O₃ и многослойное покрытие W/CeB₆ приведен на рис.1. Сканирование проводилось на длине 500 мкм в центральной части поверхности образцов.

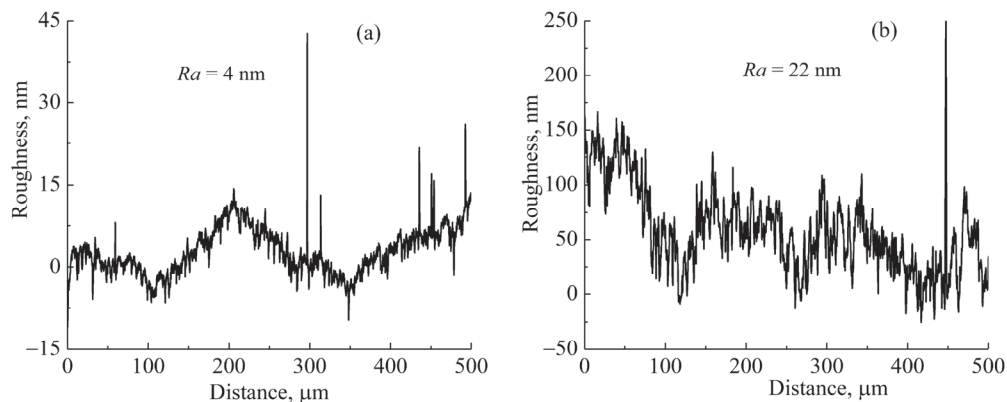


Рис.1. Шероховатость поверхности пленок: (a) SiO₂a3 на подложке Al₂O₃, (b) SiO₂c2 на покрытии W/CeB₆.

Сравним шероховатости представленных на рис.1 пленок. Поверхность пленки, напыленной на подложку Al₂O₃ более гладкая и имеет шероховатость 4 нм, а у пленки напыленной на многослойное покрытие W/CeB₆/Al₂O₃ шероховатость значительно больше – 22 нм. В обоих случаях шероховатость поверхности пленок SiO₂ обуславливается шероховатостью поверхности, на которую она напыляется.

Для изучения химического состава и микроструктуры поверхность образцов была покрыта тонким слоем алюминия. Состав пленок всех трех напылений практически не отличался от стехиометрического (максимальная статистическая ошибка измерения содержания Si и O составляла ± 0.21 ат % и ± 0.37 ат % соответственно). Неконтролируемые примеси не были обнаружены.

На микрофотографиях поверхности пленок нам не удалось увидеть гранулы даже при увеличении электронного микроскопа в 50 000 раз. Данный факт позволяет предположить, что нами получены аморфные пленки, что подтверждается отсутствием максимумов на рентгенограммах образцов всех трех напылений, которые свойственны кристаллическим образцам SiO₂. При меньшем увеличении в отдельных местах на гладкой поверхности некоторых пленок серии

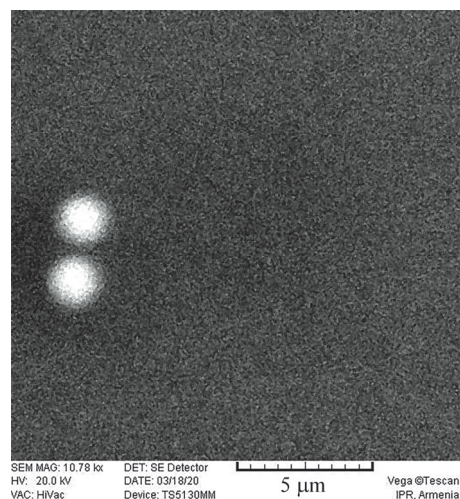


Рис.2. СЭМ изображения поверхности образца SiO_{1a2} на подложке Al_2O_3 , увеличение 10 000×.

$\text{SiO}1$ можно увидеть частицы сферической формы микронных размеров, что является результатом присутствия мелких капель расплава в испаренном электронным пучком веществе мишени. Очевидно, что процесс испарения мишени проходит довольно интенсивно при использованных условиях напыления. На рис.2 представлены СЭМ изображения поверхности образца $\text{SiO}1a2$ с описанными дефектами.

Табл.2. Толщина, шероховатость поверхности и коэффициент оптического отражения пленок SiO_2

№	Подложка	h , нм	Ra , нм	R	
				1310 нм	1550 нм
$\text{SiO}1a2$	Al_2O_3	6250	2.4	0.02	0.03
$\text{SiO}1c2$	$\text{W/CeB}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$	4500	22.5	0.56	0.44
$\text{SiO}1d2$	$\text{W}/\text{Al}_2\text{O}_3$	6700	14.9	0.52	0.57
$\text{SiO}2d1$	$\text{LaB}_6/\text{CeB}_6/\text{Si}$	338	17.6	0.78	0.71
$\text{SiO}2c2$	$\text{W/CeB}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$	212	22	0.57	0.57
$\text{SiO}2d2$	$\text{W}/\text{Al}_2\text{O}_3$	208	5	0.57	0.55
$\text{SiO}2a3$	Al_2O_3	219	4	0.04	0.02
$\text{SiO}2b3$	AlN	249	23	0.04	0.03
$\text{SiO}2d3$	Si	262	3.37	0.36	0.31
$\text{SiO}3c2$	$\text{W/CeB}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$	223	7.9	0.56	0.66
$\text{SiO}3a3$	Al_2O_3	456	4	0.05	0.05

Для оценки возможности применения пленок SiO_2 в качестве антиотражающего покрытия нами изучены спектры оптического отражения образцов различной толщины и с различной шероховатостью. Результаты профилометрии и исследования оптического отражения полученных образцов обобщены в табл.2, где приведены номер образца, тип подложки или многослойной структуры, на которые напылялись пленки, толщина пленки (h), шероховатость поверхности пленки (Ra), коэффициент отражения (R) на длине волны 1310 нм и 1550 нм. Излучение этих длин волн наиболее часто используется в телекоммуникационных системах связи. Из данных таблицы следует, что толщины пленок одного и того же процесса напыления несколько отличаются, что является следствием угловой зависимости скорости массопереноса испаренного из мишени вещества. Эта особенность свойственна всем методам напыления фокусированным пучком с небольшой площади мишени. В то же время, значительно отличаются толщины пленок различных напылений. Толстые пленки (~6.5 мкм) получены в первом, более продолжительном напылении при наименьшем расстоянии мишень-подложка. Толщины пленок двух других напылений значительно меньше (~0.2–0.4 мкм).

Шероховатость пленок находится в пределах от минимальной 2.4 нм (SiO1a2 , подложка Al_2O_3) до максимальной 27 нм (SiO1c2 , покрытие W/CeB_6). Коэффициент отражения на длине волны 1310 нм изменяется от 0.02 (SiO1a2 , подложка Al_2O_3) до 0.78 (SiO2d1 , покрытие $\text{LaB}_6/\text{CeB}_6/\text{Si}$), а на длине волны 1550 нм – от 0.03 (SiO1a2 , подложка Al_2O_3 ; SiO2b3 , подложка AlN) до 0.71 (SiO2d1 , покрытие $\text{LaB}_6/\text{CeB}_6/\text{Si}$).

Коэффициент отражения пленок SiO_2 на подложке Al_2O_3 изменяется в небольших пределах 0.02–0.05 для пленок всех трех напылений со значительно разной толщиной и практически одинаковой шероховатостью (2.4–4 нм). Коэффициент отражения пленки на подложке AlN , при значительно большей шероховатости поверхности (23 нм), также мал – 0.04 ($\lambda=1310$ нм) и 0.03 ($\lambda=1550$ нм). Пленки SiO_2 , напыленные на W подслои (SiO1d2 , SiO2d2) или многослойное покрытие с W верхним слоем (SiO1c2 , SiO2c2 , SiO3c2), имеют намного больший коэффициент отражения (0.44–0.66) при изменении значений шероховатости в пределах 5–27 нм. В этих же пределах (0.44–0.66, $\lambda=1550$ нм) изменяется коэффициент отражения пленок SiO_2 на многослойном покрытии с CeB_6 верхним слоем, хотя на длине волны 1310 нм коэффициент отражения для пленок всех трех напылений (SiO1c2 , SiO2c2 , SiO3c2) практически одинаков. Максимальным отражением 0.78 и 0.71, на длинах волн 1310 нм и 1550 нм соответственно, обладает образец SiO2d1 , в котором пленка SiO_2 напылена на многослойное покрытие с LaB_6 верхним слоем.

Обобщая данные таблицы 2, можем утверждать, что величина коэффи-

циента отражения пленок SiO_2 на обеих рассмотренных длинах волн зависит от материала слоя, на который напылена пленка и не зависит от шероховатости поверхности пленки. Последнее не вызывает удивления, т.к. даже максимальная шероховатость поверхности образцов намного меньше длин волн излучения ближней ИК области.

Спектры отражения в интервале 1–2 мкм пленок SiO_2 на Al_2O_3 и AlN подложках трех напылений приведены на рис.3. Как видно из графиков, во всей области измерений отражение меньше 10%, а в спектральной области 1300–2000 нм отражение порядка 3%. Следовательно, в спектральной области 1300–1600 нм двухслойные покрытия $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ и SiO_2/AlN могут быть использованы в качестве антиотражающего покрытия.

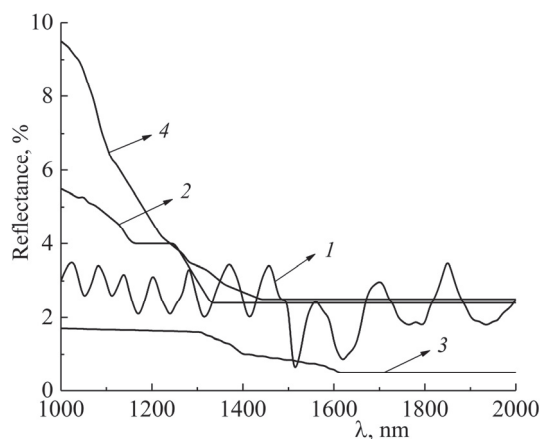


Рис.3. Спектры отражения пленок SiO_2 : 1 – SiO_2a_2 , 2 – SiO_2a_3 , 3 – SiO_2a_3 на подложке Al_2O_3 и 4 – SiO_2b_3 на подложке AlN .

4. Заключение

Электронно-лучевым методом на различных подложках и многослойных покрытиях получены пленки SiO_2 . Исследованы микроструктура и шероховатость поверхности, элементный состав и спектры оптического отражения. На основе исследования оптических характеристик образцов сделан вывод о том, что пленки SiO_2 уменьшают отражение в диапазоне 1300–1600 нм, но у пленок на покрытиях W , CeB_6 , LaB_6 коэффициент отражения выше 0.5, что не может обеспечить высокую эффективность детектирования. Коэффициент отражения менее 0.03, достигнут для пленок SiO_2 различной толщины и шероховатости на подложках Al_2O_3 и AlN . Таким образом можем предположить, что покрытие, состоящее из слоев AlN , Al_2O_3 и SiO_2 , может уменьшить коэффициент отражения в ИК диапазоне и использоваться в качестве антиотражающего слоя в чувствительном элементе TSPD для достижения высокой эффективности детектирования.

Авторы выражают благодарность А.М. Гуляну за интерес к работе и полезные обсуждения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Государственного комитета по науке МОН РА в рамках научного проекта № 18T-2F134.

ЛИТЕРАТУРА

1. **C.J. Chunnillall, I.P. Degiovanni, S. Kuck, I. Muller, A. G. Sinclair.** Optical Engineering, **53(8)**, 081910 (2014).
2. **M.D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall, S.V. Polyakov.** Review of Scientific Instruments, **82**, 071101 (2011).
3. **R.H. Hadfield.** Nature Photonics, **3**, 696 (2009).
4. **H. Zhang, L. Xiao, B. Luo, J. Guo, L. Zhang, J. Xie.** J. Phys. D: Appl. Phys., **53**, 013001 (2020).
5. **P.A. Hiskett, D. Rosenberg, C.G. Peterson, R.J. Hughes, S. Nam, A.E. Lita, A.J. Miller, J.E. Nordholt.** New J. Phys., **8**, 193 (2006).
6. **E. Knill, R. Laflamme, G. J. Milburn.** Nature, **409**, 46 (2001).
7. **G.G. Fritz, K.S. Wood, D. Van Vechten, A.L. Gyulamiryan, A.S. Kuzanyan, N.J. Giordano, T.M. Jacobs, H.-D. Wu, J.S. Horwits, A.M. Gulian.** Proc. SPIE, San Diego, CA, **4140**, 459 (2000).
8. **D. Van Vechten, K. Wood, G. Fritz, J. Horwitz, A. Gyulamiryan, A. Kuzanyan, V. Vartanyan, A. Gulian.** Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, **444**, 42 (2000).
9. **V.A. Petrosyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **46**, 125 (2011).
10. **A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **52**, 249 (2017).
11. **A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan.** Proc. SPIE, **10229**, 10229 (2017).
12. **A.A. Kuzanyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **51**, 360 (2016).
13. **A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **53**, 73 (2018).
14. **A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **53**, 242 (2018).
15. **A.S. Kuzanyan, A.A. Kuzanyan, V.N. Gurin, M.P. Volkov, V.R. Nikoghosyan.** Semiconductors, **53(5)**, 682 (2019).
16. **A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **54**, 175 (2019).
17. **A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan.** IEEE Sensors, **20(6)**, 3040 (2020).
18. **W.J. Zhang, L.X. You, H. Li, J. Huang, C.L. Lv, L. Zhang, X.Y. Liu, J.J. Wu, Z. Wang, X.M. Xie.** Sci. China-Phys. Mech. Astron., **60**, 120314 (2017).
19. **I.E. Zadeh, J.W.N. Los, R.B.M. Gourgues, G. Bulgarini, S.M. Dobrovolskiy, V. Zwiller, S.N. Dorenbosz.** ArXiv:1801.06574v1 (2018).
20. **M. Caloz, M. Perrenoud, C. Autebert, B. Korzh, M. Weiss, C. Schönenberger, R.J. Warburton, H. Zbinden, F. Bussi eres.** Appl. Phys. Lett., **112**, 061103 (2018).
21. **S. Dzioba, R. Rousina.** J. Vac. Sci. Technol. B, **12**, 433 (1994).

22. **A.A. Volinsky, J.B. Vella, W.W. Gerberich.** Thin Solid Films, **429**, 201 (2003).
23. **J. Olivares, E. Wegmann, J. Capilla, E. Iborra, M. Clement, L. Vergara, R. Aigner.** IEEE Trans Ultrason Ferroelectr Freq Control, **57(1)**, 23 (2010).
24. **M. Mazur, D. Wojcieszak, J. Domaradzki, D. Kaczmarek, S. Song, F. Placido.** Electron Rev., **21(2)**, 233 (2013).
25. **J. Boudadena, P. Oelhafena, A. Schulerb, C. Roeckerb, J.-L. Scartezzinib.** Solar Energy Materials & Solar Cells, **89**, 209 (2005).
26. **H.K. Raut, A.S. Nair, S.S. Dinachali, V.A. Ganesh, T.M. Walsh, S. Ramakrishna.** Solar Energy Materials & Solar Cells, **111**, 9 (2013).
27. **E. Çetinörgü, B. Baloukas, O. Zabeida, J.O. Klemberg-Sapieha, L. Martinu.** Appl. Opt., **48(23)**, 4536 (2009).
28. **J.Z. Wang, Y.Q. Xiong, D.S. Wang, H.K. Liu.** Physics Procedia, **18**, 143 (2011).
29. **T. Harada, Y. Yamada, H. Uyama, T. Murata, H. Nozoye.** Thin Solid Films, **392(2)**, 191 (2001).
30. **W.-F. Wu, B.-S. Chiou.** Appl. Surf. Sci., **99(3)**, 237 (1996).
31. **W. Klug, R. Schneider, A. Zoller.** Proc. SPIE, **1323**, 88 (1990).
32. **N. Charnd, J.E. Johnson, J.W. Oscenbach, W.C. Liang, L.C. Feldman, W.T. Tsang, H.W. Krautter, M. Passlack, R. Hull, V. Swaminathan.** J. Cryst. Growth, **148**, 336 (1995).

THE USE OF SILICON DIOXIDE FILMS AS AN ANTIREFLECTION COATING FOR A THERMOELECTRIC SINGLE-PHOTON DETECTOR

A.A. KUZANYAN, S.I. PETROSYAN, A.S. KUZANYAN, G.R. BADALYAN

The anti-reflection layers are an important parts of high-performance single-photon detectors' sensitive elements. Amorphous silicon dioxide films are obtained by electron beam deposition method on Al_2O_3 , AlN, Si substrates and CeB_6 , LaB_6 , W coatings. The elemental composition, microstructure and roughness of the surface as well as the optical characteristics of samples obtained under various deposition conditions are investigated. It is shown that $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ and SiO_2/AlN two-layer coatings can provide high detection efficiency for detecting near infrared region radiation, that is used in telecommunication systems and quantum information processing devices.