

بررسی خواص اپتیکی لایه نازک SiON تولید شده به روش رسوب گذاری

شیمیایی بخار پلاسمایی

مرضیه عباسی فیروزجاه

گروه علوم مهندسی، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران

(دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۱/۲۶ - پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۴/۳)

چکیده

خواص اپتیکی لایه‌های نازک اکسی نیتريد سيليكون (SiON) مورد بررسی قرار گرفته است. لایه‌های SiON به روش رسوب‌گذاری شیمیایی بخار پلاسمایی روی زیرلایه‌های شیشه و سیلیسوم رشد داده شدند. برای تولید پلاسمای از منبع تغذیه فرکانس رادیویی با کوپل خازنی استفاده شده است. همچنین از ماده آلی سیلیکاتی تترااتیل اورتوسیلیکات (TEOS)، اکسیژن و نیتروژن به ترتیب برای منبع سیلیسیوم، گاز اکسیدکننده و منبع نیتروژن استفاده شده است. مکانیزم رشد و تغییرات ضریب شکست و همچنین تغییرات جذب اپتیکی لایه‌ها مورد مطالعه قرار گرفته است. از نتایج می‌توان فهمید که گونه‌های فعال نیتروژن اتمی و یونی تولید شده در حجم پلاسمای مشابه ذرات اکسیژنی در مکانیزم اکسیداسیون عمل کرده و باعث تجزیه مولکول‌های TEOS می‌شوند. از این رو افزایش شار نیتروژن در ترکیب گازی پلاسمای موجب کاهش ناخالصی‌های آلی ناشی از مونومرهای TEOS می‌گردند. زبری لایه‌ها کمتر از ۰.۲ nm اندازه‌گیری شدند. همچنین، نتایج بررسی نشان داد که با افزودن گاز نیتروژن در ترکیب گازی پلاسمای می‌توان بدون تغییر قابل توجهی در شفافیت لایه‌های اکسید سیلیسیوم ضریب شکست آن‌ها را افزایش داد. در نهایت با افزایش شار نیتروژن از ۰ تا ۸۰ ضریب شکست لایه‌ها از ۱.۴۴۶ تا ۱.۴۶۴ افزایش یافت در حالی که میزان جذب اپتیکی لایه‌ها در همه موارد کمتر از ۱ اندازه‌گیری شد. واژه‌های کلیدی: رسوب‌گذاری شیمیایی بخار پلاسمایی؛ SiON، ضریب شکست؛ شفافیت؛ AFM

Investigating Optical Properties of SiON Thin Film Produced by Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition Method

Abstract

The optical properties of silicon oxynitride thin films (SiON) have been investigated. SiON films were grown on glass and silicon substrates by plasma enhanced chemical vapor deposition. A radio frequency power source with a capacitor coupler is used to produce plasma. Moreover, tetraethyl-orthosilicate (TEOS), oxygen, and nitrogen have been used as silicon source, oxidizing gas, and nitrogen source, respectively. Growth mechanism and the variation of the refractive index as well as the variation of the optical absorption of the films have been studied. From the results, it can be understood that the atomic and ionic active nitrogen species produced in the plasma volume act similar to oxygen species in the oxidation mechanism and cause the decomposition of TEOS molecules. Therefore, the increase of nitrogen flux in the plasma gas mixture results in the reduction of organic impurities caused by TEOS monomers. The roughness of the films was measured below 0.2 nm. The results also showed that by adding nitrogen gas in the plasma gas mixture, it is possible to increase the refractive index of the silicon oxide films without significant change in their transparency. Finally, with the increase of nitrogen flux from 0 to 80 sccm, the refractive index of the films increased from 1.446 to 1.464, while the optical absorption was measured to be less than 1 in all cases.

Keywords: Plasma Enhanced chemical vapor deposition; SiON; refractive index; AFM

E-mail of Corresponding author: abbasimarzieh@gmail.com

مقدمه

متعدد آن و امکان ترکیب کردن عناصر مختلف به درون

لایه را ایجاد می کند. [۴-۷]

برای دستیابی به ویژگی مورد نظر و یا تغییر خواص لایه‌های اکسید سیلیسیوم برای کاربردهای خاص ترکیبات مختلفی از این اکسید با افزودن انواع عناصر تولید می‌شود. از جمله می‌توان افزودن کربن، هیدروژن، فلورین و یا نیتروژن برای افزایش تخلخل، کاهش ضریب شکست، کاربردهای زیستی و افزایش مقاومت در برابر نفوذ اکسیژن و یا بخار آب و یا ارتقا پایداری مکانیکی نام برد [۸-۱۴]. در کاربردهای اپتیکی لایه‌های بر پایه اکسید سیلیسیوم با ضریب شکست‌های قابل تنظیم کاربردهای وسیعی دارند که در عین حال لازم است دارای شفافیت بالا باشند. تا کنون تحقیقات زیادی در رابطه با تولید ترکیبات مختلف بر پایه اکسید سیلیسیوم برای کاربردهای اپتیکی صورت گرفته است ولی بررسی شفافیت لایه‌ها در کنار بررسی تغییرات ضریب شکست لایه‌ها (به ویژه برای ضریب شکست بالاتر از لایه اکسید سیلیسیوم) هنوز نیاز به تحقیقات بیشتری دارد [۱۴ و ۱۵]. از طرفی بررسی ضریب شکست و جذب اپتیکی لایه نازک با ترکیب اکسی نیتريد سیلیکون بسیار کم مورد بررسی قرار گرفته است.

هدف از این تحقیق تولید لایه‌های اکسید سیلیسیومی با ساختار SiO_xN_y با استفاده از پیش ماده آلی سیلیکاتی TEOS به همراه گازهای اکسیژن و نیتروژن است. همچنین در این تحقیق به بررسی اثر افزایش شار گاز نیتروژن در ترکیب گازی پلاسمای TEOS-اکسیژن در تغییر مکانیزم رشد و ضریب شکست و شفافیت لایه‌های پرداخته می‌شود.

مواد و روش تحقیق

لایه‌های نازک SiO_xN_y با استفاده از دستگاه پلاسمایی کوپل خازنی در فرکانس رادیویی ۱۳.۵۶ مگاهرتز، روی زیرلایه‌های سیلیسیوم پوشش‌دهی شدند. زیرلایه‌ها قبل

ضریب شکست و ثابت دی‌الکتریک لایه‌ی اکسید سیلیسیوم خالص و چگال به ترتیب برابر ۱/۴۵ و ۴/۰ است. این ماده جزء مواد با ضریب شکست کم و همچنین شفافیت بسیار بالاست. به طوری که ضریب جذب اپتیکی اکسید سیلیسیوم خالص نزدیک به صفر است. از این رو لایه‌های نازک ترکیبی سیلیکاتی که بر پایه اکسید سیلیسیوم باشند، کاربردهای بسیار متعددی در صنایع مختلف دارند. این پوشش‌ها کاربردهای وسیعی به ویژه در صنعت اپتیک و اپتوالکترونیک دارند [۱-۴].

پوشش‌های مورد نیاز صنایع اپتیک و اپتوالکترونیک، به عنوان مثال در ابزارهای اپتیکی از قبیل فیلترها، تشدید کننده‌ها، موجرها، بلورهای فتونیک، سلول‌های خورشیدی، سنسورهای نوری و دیودهای نوری، باید دارای کیفیت بسیار بالا و سطحی بسیار یکنواخت، همگن و با زبری بسیار پایین باشند. روشی که به منظور تولید چنین پوشش‌هایی انتخاب می‌گردد، علاوه بر قابلیت تولید پوشش با کیفیت لازم اپتیکی، باید بتواند ویژگی‌های اپتیکی کاملاً مشخصی را با خطای بسیار کمی برای این پوشش‌ها ایجاد کند. از جمله این ویژگی‌ها ضریب شکست، میزان جذب اپتیکی و ضخامت است. در بین روش‌های مختلفی که برای تولید لایه‌های نازک اکسید سیلیسیوم به کار می‌رود روش رسوب‌گذاری شیمیایی بخار پلاسمایی (PECVD) مزیت‌های بسیار زیادی دارد که از آن جمله تولید لایه‌های با کیفیت بسیار بالا که برای کاربردهای اپتیک و اپتوالکترونیک و همچنین نانوالکترونیک مطلوب است. در این روش لایه‌های چگال با زبری بسیار کم، یکنواختی و همگنی بسیار خوب، تنش کم، استحکام مکانیکی بالا، چسبندگی خوب به زیرلایه (مخصوصاً به سیلیکون و انواع پلیمرها) حاصل می‌گردد. علاوه بر این موارد، این روش قابلیت لایه‌نشانی در دمای کم و ایجاد پوشش یکنواخت سطوح با هندسه‌های سه بعدی پیچیده را دارد که در عین حال امکان کنترل بسیار دقیق ضخامت و خواص لایه را از طریق تنظیم متغیرهای

که از تصاویر دوبعدی AFM به دست آمده اند. در نهایت مقادیر میانگین زبری به همراه خط گزارش شده است.

نتایج و بحث

نمودار تغییرات آهنگ رشد لایه بر حسب شار نیتروژن در شکل ۱ نشان داده شده است. همان طور که این نمودار نشان می‌دهد، با افزایش شار نیتروژن در ترکیب گازی پلاسما و با ثابت ماندن شار اکسیژن و بخار TEOS، آهنگ رشد لایه کاهش می‌یابد. تغییرات ضخامت در مقادیر نیتروژن بیشتر از ۶۰ sccm با شیب تندتری نسبت به مقادیر نیتروژن کمتر از ۶۰ sccm می‌باشد. برای توضیح این روند مکانیزم تشکیل لایه مورد بررسی قرار می‌دهیم. برای تشکیل لایه اکسید سیلیسیوم با استفاده از پیش ماده TEOS، مولکول‌های این ماده در محیط پلاسما تجزیه شده و فرگمت‌های ناشی از آن جذب سطح زیرلایه می‌شود. این فرگمت‌ها در کنار یکدیگر قرار گرفته و با هم پیوند برقرار می‌کنند. شرط اینکه لایه ایجاد شده و رشد کند، این است که مولکول‌های TEOS که جذب سطح لایه‌ی در حال رشد می‌شوند، تا اندازه‌ای کوچک باشند به عبارتی شاخه‌های ارگانیکی آن تا اندازه‌ای جدا شود. در غیر این صورت مولکول‌های TEOS یا فرگمت‌هایی که به سطح می‌رسند اشباع شده و نسبت پیوندهای آزاد کمتر شده و مانع از برقراری پیوند بین ذرات می‌شود [۱۶].

هرچه فرگمت‌هایی که به سطح می‌رسند، کوچکتر باشند لایه با ناخالصی‌های آلی کمتری تولید می‌شود. این ناخالصی‌های آلی ناشی از پیوندهای C-H در شاخه‌های آلکالی متصل به مولکول‌های TEOS و فرگمت‌های آن است. بنابراین هرچه فرگمت‌ها کوچکتر باشند، این پیوندها کمتر در ترکیب لایه قرار خواهد گرفت [۱۰ و ۱۱]. در محیط پلاسمایی TEOS-O₂، مولکول‌های TEOS طی دو مکانیزم اصلی برخورد الکترونی و اکسیداسیون به فرگمت‌های کوچکتر تجزیه می‌شوند. با ثابت بودن توان اعمالی و فشار کاری، مقدار یونیزاسیون تقریباً ثابت بوده و چگالی الکترون‌های آزاد و فعال در محیط پلاسما نیز

از انتقال به محفظه لایه‌نشانی با استفاده از حمام آلتراسونیک به ترتیب با آب مقطر دوبار-یونیزه و اتانول هرکدام به مدت ۱۵ دقیقه شستشو می‌شدند. ترکیب گازی مورد استفاده برای تشکیل پلاسما، گاز اکسیژن و گاز نیتروژن هر کدام با خلوص ۹۹.۹۹۹٪ و بخار TEOS (از شرکت Merck) با خلوص ۹۹٪ بوده است. شار گازها و شار بخار TEOS به ترتیب با دستگاه کنترل کننده شار جرمی و سیستم تبخیر تنظیم و کنترل می‌شد. شار اکسیژن و شار بخار TEOS، به ترتیب با مقادیر ۲۰۰ sccm و ۸ sccm ثابت نگه داشته می‌شد. شار نیتروژن از مقدار ۰ تا ۱۰۰ sccm تغییر داده می‌شد. همچنین، فشار پایه محفظه حدود ۰.۵ میلی‌تور، توان به اندازه ۱۵۰ وات و فشار کاری فرآیند ۶۰ میلی‌تور بوده است. مدت زمان فرآیند پوشش‌دهی در همه آزمایشات، ۵ دقیقه تنظیم شد. در فرایند لایه نشانی از هیچ دستگاه گرمایشی خارجی برای گرم کردن زیرلایه‌ها استفاده نشده است.

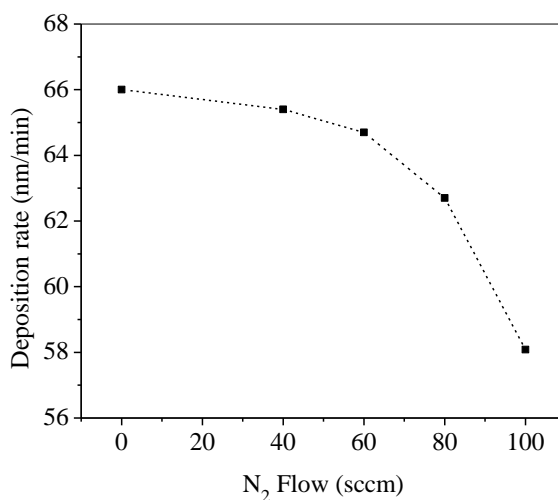
ضخامت، ضریب شکست و ضریب جذب لایه‌ها با استفاده از دستگاه بیضی‌سنجی طیفی (مدل SE800) مشخصه‌یابی شدند. خواص اپتیکی لایه‌ها به صورت طیفی و در محدوده ۴۰۰ تا ۹۰۰ نانومتر اندازه‌گیری شدند. در این اندازه‌گیری‌ها با استفاده از دستگاه بیضی‌سنجی، زاویه پرتو فرودی ۷۰° تنظیم می‌شود. این مقدار به علت نزدیک بودن به زاویه بروستر انتخاب شده است. در اندازه‌گیری‌های بیضی‌سنجی برای بالا بردن دقت اندازه‌گیری، زاویه پرتو فرودی در حدود زاویه بروستر انتخاب می‌شود تا نوری تقریباً قطبیده به دست آید.

به منظور مطالعه مورفولوژی و بررسی زبری سطح لایه‌ها از دستگاه میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) (مدل Easyscan2 Flex-AFM، شرکت Nanosurf) در مد تماسی استفاده شده است. آنالیز AFM برای هر نمونه چندین بار تکرار شده است. تصویربرداری‌ها در ابعاد ۳×۳ میکرومتر انجام شده‌اند. در هر تصویر ۲۵۶ خط و در هر خط ۲۵۶ نقطه اسکن شده است. مقادیر زبری از نتایج تحلیل آماری نرم افزار از کمیت RMS حاصل شده است

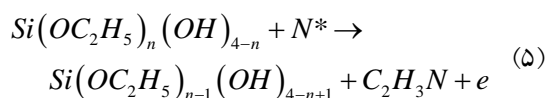
اندازه فرگمنت TEOS بزرگتر و شاخه آلکالی آن بیشتر خواهد بود. $N=4$ مربوط به مولکول تجزیه نشده TEOS است. N^* نیتروژن اتمی برانگیخته است. عامل دیگری که می‌تواند موجب تشدید روند کاهش آهنگ رشد لایه شود، اثر کننده کاری ناشی از یون‌های مثبت و پر انرژی نیتروژنی است که از ناحیه حجم پلاسما وارد ناحیه غلاف پلاسمایی شده و سطح لایه در حال رشد را بمباران می‌کنند. در سیستم پلاسمای فرکانس رادیویی با کوپل خازنی، روی الکتروود توان شده با ولتاژی با فرکانس RF، یک ولتاژ بایاس منفی به طور خود به خودی القا می‌شود. در اثر این ولتاژ بایاس و میدانی که در ناحیه غلاف پلاسما وجود دارد، یون‌های مثبت از جمله یون‌های مثبت نیتروژنی وارد شده به این ناحیه، شتاب می‌گیرند.

توپوگرافی سطح لایه‌ها با تصاویر دو بعدی از آنالیز AFM در ابعاد $3\mu m \times 3\mu m$ در شکل ۲ نشان داده شده است. همچنین آنالیز خطی مرتبط با آن در شکل ۳ نشان داده شده است. همان طور که در این شکل‌ها دیده می‌شود، لایه‌هایی که در مقادیر کمتر شار نیتروژن رسوب‌گذاری می‌شوند دارای یکنواختی بیشتری هستند. به طور کلی محدوده تغییرات توپوگرافی سطح حدود یک نانومتر است. نکته جالب توجهی که می‌توان به آن اشاره کرد این است که در تصویر AFM مربوط به لایه تولید شده در شار ۱۰۰ sccm نیتروژن، حفره‌هایی روی سطح آن دیده می‌شود.

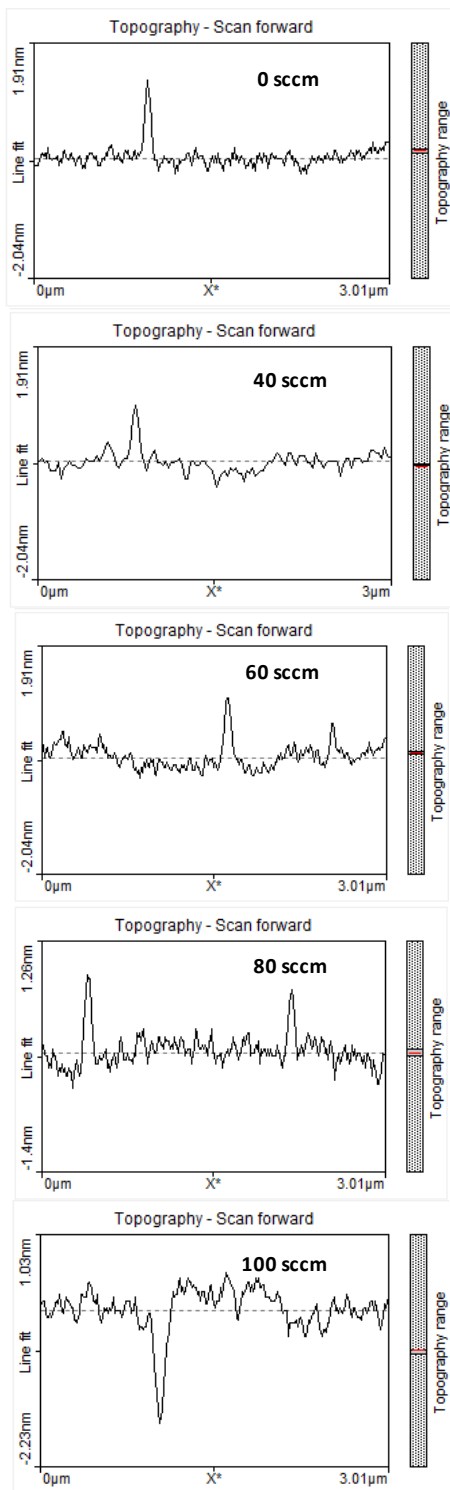
تقریباً بدون تغییر خواهد ماند [۱۱]. بنابراین با افزایش شار نیتروژن، سهم مکانیزم برخورد الکترونی در تجزیه مولکول‌های TEOS تغییر قابل ملاحظه‌ای نخواهد داشت. از طرفی با ثابت بودن شار اکسیژن و توان اعمالی چگالی اتم‌های و یون‌های فعال اکسیژنی نیز تغییر نمی‌کند. در اینجا می‌توان گفت مولکول‌های نیتروژن در محیط پلاسما تجزیه شده و نیتروژن‌های فعال اتمی و یونی تولید می‌کند که مشابه مکانیزم اکسیداسیون می‌توانند باعث تجزیه مولکول‌های TEOS شوند [۸ و ۱۱]. در زیر واکنش‌های اصلی مربوط به تجزیه مولکول‌های اکسیژن و نیتروژن و همچنین واکنش مولکول و یا فرگمنت‌های TEOS با نیتروژن‌های اتمی برانگیخته آمده است: [۸ و ۱۸]



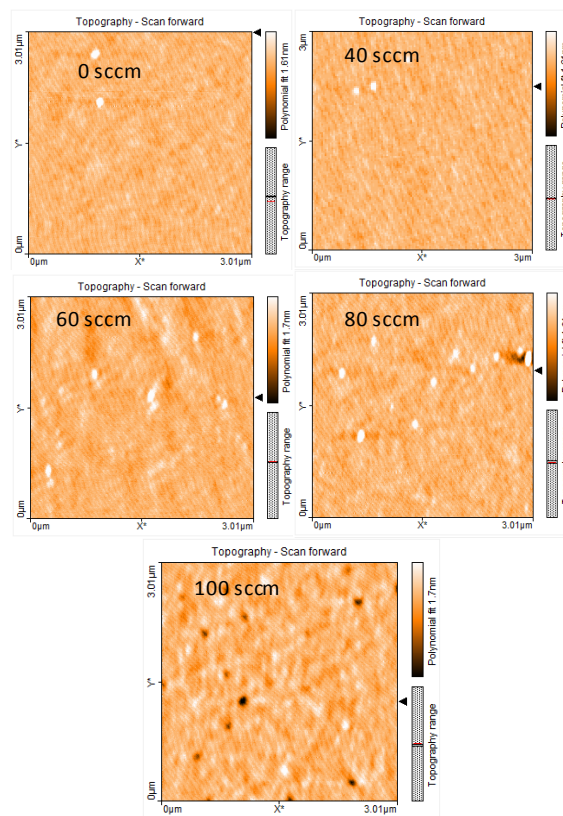
شکل ۱: تغییرات آهنگ رشد لایه بر حسب شار نیتروژن.



که در آن فرگمنت‌های TEOS $Si(OC_2H_5)_n(OH)_{4-n}$ بوده و n عدد صحیح بین ۱ تا ۴ است و هر چه بزرگتر باشد



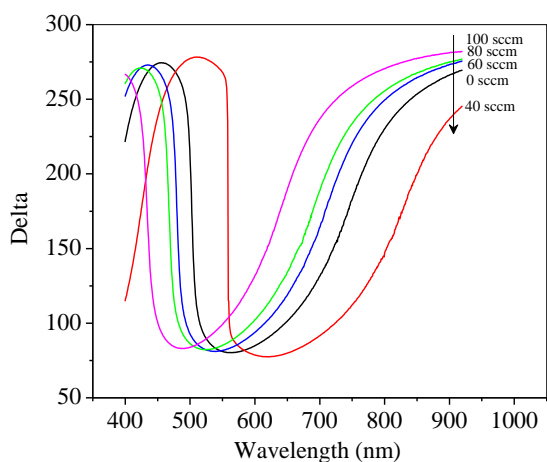
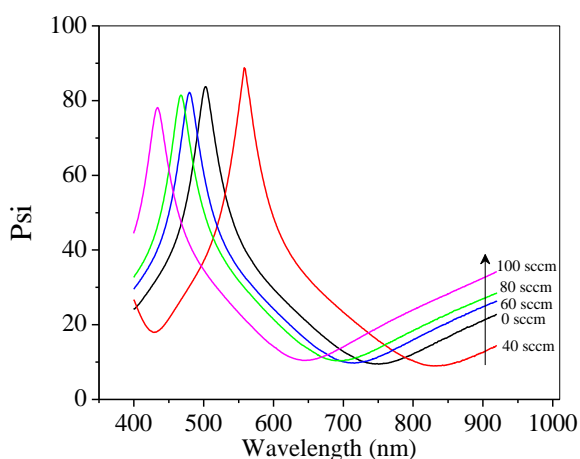
شکل ۳: آنالیز خطی AFM از سطح لایه‌ها مربوط به مقادیر مختلف شار نیتروژن.



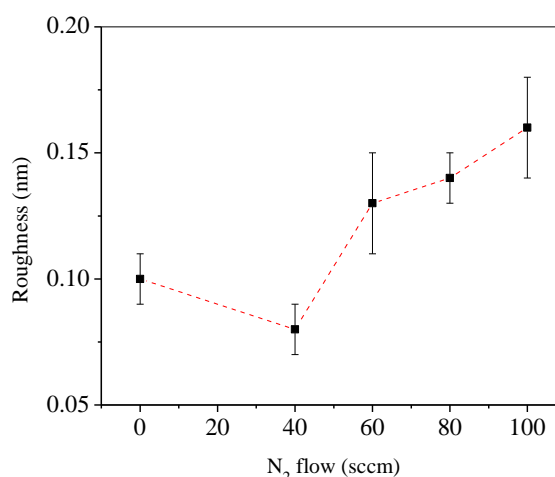
شکل ۴: توپوگرافی سطح لایه‌ها با تصاویر دو بعدی از آنالیز AFM مربوط به مقادیر مختلف شار نیتروژن.

این حفره‌ها می‌تواند ناشی از بمباران سطح لایه در حال رشد با یون‌های مثبت و پر انرژی نیتروژنی است که در ناحیه غلاف پلاسمایی شتاب گرفته و با برخورد با سطح لایه در حال رشد باعث کنده کاری و ایجاد حفره در لایه در حال رشد می‌گردند. البته این حفره‌ها فقط در بیشترین شار نیتروژن آزمایش شده (۱۰۰ sccm)، قابل مشاهده است. این مسئله می‌تواند به این علت باشد که چگالی یون‌های تولید شده در شارهای کمتر نیتروژن کمتر است. به منظور بررسی دقیق‌تر تغییرات زبری سطح لایه‌ها، مقدار زبری لایه‌ها از جذر میانگین پستی و بلندی‌های سطح مربوط به تصاویر دو بعدی $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$ استخراج شده و نمودار تغییرات آن بر حسب شار نیتروژن در شکل ۴ نشان داده شده است.

در شکل ۵ داده‌های طیفی ψ (Psi) و Δ (Delta) به دست آمده مربوط به مقادیر مختلف شار نیتروژن نشان داده شده است. برای مدل‌سازی از ساختار سه لایه‌ای شامل هوا، یک لایه نازک مدل کوشی و یک زیرلایه سیلیکانی استفاده می‌شود. مدل کوشی متداول‌ترین مدل به کار رفته برای لایه‌های شفاف است [۱۹ و ۲۰].



شکل ۵: تغییرات نمودارهای طیفی ψ (Psi) و Δ (Delta) به دست آمده مربوط به مقادیر مختلف شار نیتروژن.

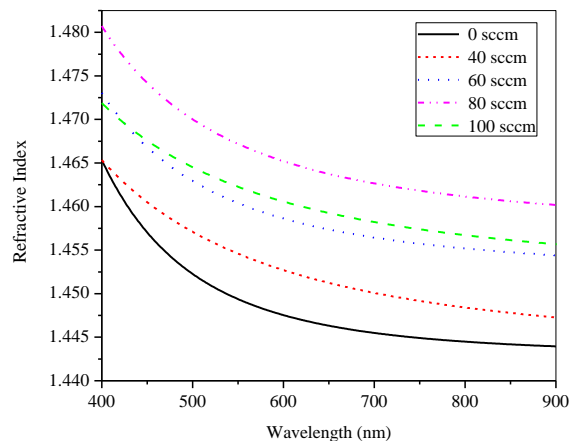


شکل ۴: تغییرات زبری سطح لایه‌ها بر حسب شار نیتروژن.

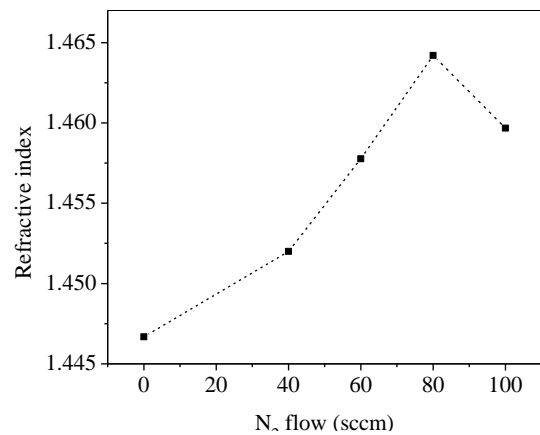
نتایج محاسبه زبری نشان می‌دهد که با تغییر شار نیتروژن از ۰ تا ۴۰ sccm، زبری لایه کاهش داشته است که این می‌تواند به دلیل شکسته شدن شاخه‌های آلکالی در فرگمنت‌های TEOS در اثر واکنش با نیتروژن‌های اتمی فعال باشد که باعث کاهش ناخالصی و در نتیجه افزایش نظم ساختاری لایه می‌گردد. ولی با افزایش بیشتر شار نیتروژن از ۴۰ sccm تا ۱۰۰ sccm، زبری سطح لایه‌ها افزایش پیدا کرده است. با بیشتر شدن غلظت گاز نیتروژن در ترکیب گازی پلاسما، عناصر نیتروژن می‌توانند به صورت پیوندهای نیتروژنی (Si-N) به درون ساختار شیمیایی لایه اکسید سیلیسیوم وارد شود. [۸] در اثر جایگزین شدن این پیوندها با پیوندهای Si-O، زاویه پیوندی شبکه ساختاری اکسید سیلیسیوم تغییر کرده و نظم ساختاری لایه مختل می‌شود. از این رو با افزایش شار نیتروژن در این بازه، زبری سطح افزایش می‌یابد. البته باید توجه داشت طبق نتایج برخی گزارشات [۸ و ۱۰ و ۱۱] تغییرات زبری ناشی از شار نیتروژن بسیار کمتر از اثر سایر متغیرهای فرآیند از قبیل توان اعمالی، فشار کاری و شار اکسیژن است. این به این دلیل است که در همه آزمایشات انجام شده در این تحقیق، توان اعمالی و شار اکسیژن به اندازه کافی بالا است و در این شرایط تا حد قابل ملاحظه‌ای مولکول‌های TEOS تجزیه شده و لایه چگال و با زبری کمی تولید می‌شود.

با توجه به شکل ۵ (الف) و ۵ (ب) می‌توان دید که روند تغییر فرکانس مربوط به قله در نمودار Psi و مکان کمینه در نمودار Delta، برای لایه‌هایی که با شار نیتروژن تولید شده‌اند، با افزایش شار نیتروژن به سمت فرکانس‌های کمتر انحراف پیدا کرده‌اند. در حالی که در مورد لایه‌ای که بدون شار نیتروژن تولید شده است، این انحراف متفاوت است و محل فرکانس قله یا کمینه در این نمودارها در فرکانس کمتر از لایه مرتبط به ۴۰ sccm نیتروژن واقع شده است. این مسئله می‌تواند به علت تغییر شبکه ساختاری لایه اکسید سیلیسیوم در اثر وارد شدن عنصر نیتروژن به ترکیب لایه باشد. در واقع با ورود عنصر نیتروژن و پیوندهای نیتروژنی به ساختار لایه، پیوندهای ساختاری اکسید سیلیسیوم تغییر می‌کند. این تحلیل با توضیح نتایج آنالیز AFM نیز همخوانی دارد. تغییرات ضریب شکست لایه‌ها بر حسب طول موج $(n(\lambda))$ که در مقادیر مختلف شار نیتروژن تولید شده‌اند در شکل ۶ نشان داده شده است. برای مقایسه روند تغییرات، مقادیر ضریب شکست لایه‌ها در طول موج ۶۳۳ نانومتر در نمودار شکل ۷ نشان داده شده است. با توجه به این نمودار با افزایش شار نیتروژن از ۰ تا ۸۰ sccm، ضریب شکست لایه از ۱.۴۴۶ تا ۱.۴۶۴ افزایش داشته است.

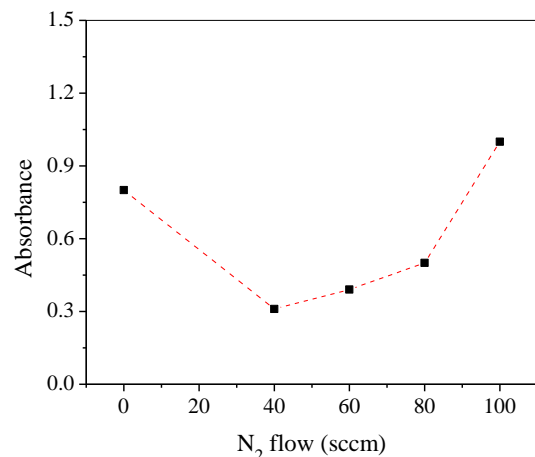
ضریب شکست لایه‌های SiON می‌تواند بسته به مقدار نیتروژن در ترکیب آن، از حدود ۱/۴۵ تا حدود ۲/۰ تغییر کند که اولی مربوط به ضریب شکست لایه اکسید سیلیسیوم (SiO_2) خالص و چگال است و دومی مربوط به لایه SiN خالص و چگال. علت این افزایش ضریب شکست به دلیل بیشتر بودن قطبش پذیری پیوندهای Si-N نسبت به Si-O است [۸]. از طرفی مطابق شرح نتایج زبری و آهنگ رشد لایه، با افزایش نیتروژن میزان ناخالصی‌های آلی لایه نیز کاهش پیدا می‌کند در نتیجه لایه با نظم ساختاری بیشتر و چگالی بیشتری رشد می‌کند و این باعث افزایش ضریب شکست لایه می‌گردد. با افزایش



شکل ۶: تغییرات ضریب شکست لایه‌ها به صورت تابعی از طول موج $(n(\lambda))$ مربوط به مقادیر مختلف شار نیتروژن.



شکل ۷: روند تغییرات ضریب شکست لایه‌ها در طول موج ۶۳۳ نانومتر.



شکل ۸: روند تغییرات در صد جذب اپتیکی لایه‌ها در طول موج ۶۳۳ نانومتر.

بیشتر شار گاز نیتروژن از ۸۰ sccm تا ۱۰۰ sccm، ضریب شکست لایه کاهش پیدا کرده است که این می-تواند به دلیل کاهش چگالی لایه در اثر حفره‌های ایجاد شده به موجب بمباران سطح لایه در حال رشد توسط یون‌های نیتروژنی با انرژی و شتاب زیاد در منطقه غلاف پلاسمایی باشد. این نتیجه به خوبی با نتیجه مورفولوژی سطح در آنالیز AFM تطابق دارد.

شایان توجه است با افزایش زیاد شار نیتروژن، ضریب شکست لایه‌ها به مقدار کمی افزایش داشته است که دلیل آن می‌تواند تشکیل پیوندهای نسبتاً کم Si-N در ساختار لایه اکسیدی باشد. با توجه به این نتیجه می‌توان گفت که مقادیر زیادی از گونه‌های فعال نیتروژنی تولید شده در پلازما با گونه‌های فعال هیدروژنی و شاخه‌های آلکنی شکسته شده از فرگمنت‌های TEOS واکنش می‌دهند و سپس از محفظه توسط پمپ خلأ تخلیه می‌شوند. به این ترتیب کسر کوچکی از گاز نیتروژن به طور مؤثر با فرگمنت‌های مرکزی TEOS در فاز گازی و یا ساختار اکسیدی لایه در حال رشد در فاز سطحی واکنش داده و در ترکیب لایه قرار می‌گیرند.

در کاربردهای ابزار اپتیکی مقدار جذب اپتیکی یک مشخصه بسیار مهم و حیاتی است و در اغلب موارد باید تا حد امکان کم باشد. شکل ۸ روند تغییرات درصد جذب اپتیکی لایه‌ها (A%) را در طول موج ۶۳۳ نانومتر نشان می‌دهد. همان طور که در این شکل می‌توان دید محدوده تغییرات جذب اپتیکی لایه بسیار کم و بین ۰/۳٪ تا ۱/۰٪ است که این نشان دهنده شفافیت بسیار بالای لایه‌ها می‌باشد. ولی با این وجود روند تغییرات به گونه‌ای است که با اضافه نمودن شار نیتروژن به اندازه ۴۰ sccm جذب اپتیکی لایه‌ها کاهش پیدا کرده است و افزایش بیشتر شار تا ۱۰۰ sccm موجب افزایش میزان جذب اپتیکی شده است. این روند تغییرات مشابه تغییرات زبری لایه‌ها است و مطابق با تحلیل آن بخش، می‌توان گفت در ابتدای روند به علت کاهش ناخالصی‌های ارگانیکی لایه‌ها

که شامل پیوندهای کربنی نیز هستند موجب کاهش جذب اپتیکی شده است و در ادامه روند ایجاد پیوندهای نیتروژنی و جایگزین شدن با پیوندهای ساختاری اکسید سیلیسیوم موجب افزایش مجدد جذب اپتیکی شده است. در تحقیقی که لایه اکسی نیتريد سیلیکون برای کاربرد به عنوان سد نفوذ بخار آب و اکسیژن تولید شد و خواص آن مورد بررسی قرار گرفت، نتایج اپتیکی به دست آمده با نتایج این تحقیق همخوانی داشته است [۸]. به طوری که نتایج تحقیق مذکور نیز مشابه با نتایج تحقیق حاضر نشان داد که با افزایش شار نیتروژن ضریب شکست لایه اکسید سیلیسیوم افزایش یافته و میزان عبور اپتیکی نیز بدون تغییر مانده است که نشان دهنده این است که لایه همچنان در محدوده نور مرئی شفاف مانده است.

نتیجه‌گیری

در این تحقیق لایه‌های نانومتری و شفاف SiO_xN_y با استفاده از روش پلیمریزاسیون پلاسمایی و با استفاده از پیش ماده آلی سیلیکاتی TEOS تولید شده است. برای تغییر ضریب شکست لایه‌ها تأثیر افزودن مقادیر مختلف شار نیتروژن از ۰ تا ۱۰۰ sccm به ترکیب گازی پلاسمای TEOS-اکسیژن مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج اندازه‌گیری ضخامت لایه‌ها نشان داد که افزایش شار نیتروژن موجب کاهش آهنگ رشد لایه‌ها می‌شود که این به دلیل کاهش اندازه فرگمنت‌های TEOS و همچنین اثر کنده‌کاری سطح لایه در حال رشد توسط یون‌های نیتروژنی فعال در منطقه غلاف پلاسمایی می‌باشد. نتایج بررسی مورفولوژی و زبری سطح لایه‌ها نشان داد که با افزایش شار نیتروژن زبری ابتدا کاهش و سپس افزایش می‌یابد. این روند با نتایج ضریب جذب اپتیکی لایه‌ها نیز در توافق بوده است. در هر دو مورد ابتدای روند تغییرات به علت کاهش میزان پیوندهای آلی شامل پیوندهای کربنی بوده است و در ادامه ایجاد پیوندهای نیتروژنی و

- [7] J. Kim, S. Jung, K. Jang, H. Park, J. Cho, W. Lee, D. Gong, B. Choi, Y. Kim, J. Park, K. Kim, J. Yi, *Electrochem. Soc.* 157 (2010) 182-185.
- [8] M. Shahpanah, S. Mehrabian, M. Abbasi-Firouzjah, B. Shokri, *Surface and Coatings Technology* 358 (2019) 91-97.
- [9] M. Abbasi-Firouzjah, B. Shokri, (2020) *Thin Solid Films*, 698, 137857.
- [10] Marzieh Abbasi-Firouzjah, Babak Shokri, *Thin Solid Films*, 577, 2015, 67-73.
- [11] M. Abbasi-Firouzjah, S. I. Hosseini, M. Shariat, B. Shokri, *J. Non-Cryst. Solids* 368 (2013) 86-92.
- [۱۲] عباسی فیروزجاه مرضیه، محمودی هادی، شگری بابک، بررسی اثر شار گاز استیلن در ترکیب پلاسما بر خواص ساختاری و اپتیکی لایه نازک آلانیده با کرین، علوم و مهندسی سطح، ۴۳(۱۳۹۹)۳۲-۲۱.
- [۱۳] عباسی فیروزجاه مرضیه، شگری بابک، بررسی فرآیند پلیمریزاسیون پلاسمایی برای تولید لایه سیلیکاتی متخلخل، علوم و مهندسی سطح، ۴۵(۱۳۹۹)۶۴-۵۱.
- [14] Jain, M., Ramos-Serrano, J. R., Dutt, A., & Matsumoto, Y. (2020, November). Photoluminescence properties of thin-film SiO_x C_y deposited by O-Cat CVD technique using MMS and TEOS. In 2020 17th International Conference on Electrical Engineering, Computing Science and Automatic Control (CCE) (pp. 1-6). IEEE.
- [15] Podlucky, L., Vincze, A., Kováčová, S., Chlpík, J., Kováč, J., & Uherek, F. (2021). Optimization of Fabrication Process for SiON/SiO_x Films Applicable as Optical Waveguides. *Coatings*, 11(5), 574.
- [16] M.T. Kim, *Thin Solid Films* 360 (2000) 60-68.
- [17] K. Takizawa, Y. Mori, N. Miyatake, K. Murata, *Thin Solid Films* 516 (2008) 3605-3609.
- [18] L. Zhang, F. Yao, G. Zhao, Y. Hao, Q. Sun, (2014) *Plasma Science and Technology*, 16(3), 203.
- [19] H.G. Tompkins, J.N. Hilfiker, *Spectroscopic Ellipsometry: Practical Application to Thin Film Characterization*, Momentum Press, New York, 2015.

جایگزین شدن با پیوندهای ساختاری اکسید سیلیسیوم تأثیرگذار بوده است. البته لازم به ذکر است که تغییرات میزان جذب اپتیکی لایه‌ها بسیار کم و برای همه لایه‌ها کمتر از ۱٪ بوده است. تغییرات ضریب شکست لایه‌ها نیز نشان داد که با افزایش شار نیتروژن ضریب شکست افزایش یافته است که این به دلیل تولید لایه چگال‌تر با نظم ساختاری بیشتر به موجب کوچک‌تر شدن فرگمنت‌های TEOS است و علت دیگر آن افزایش احتمال برقراری پیوندهای نیتروژنی و جایگزین شدن آن‌ها با پیوندهای ساختاری اکسید سیلیسیومی می‌باشد. البته با افزایش بیش از یک حد خاص شار نیتروژن، ضریب شکست کاهش یافته است و این به علت ایجاد نانوحفره‌هایی در ساختار لایه در حین فرآیند رشد بوده است که موجب ایجاد تخلخل و در نتیجه کاهش چگالی لایه می‌شود.

منابع

- [1] Y.C. Tsai, J. Shieh. *Appl. Surf. Sci.* 479 (2019) 619-625.
- [۲] مظفری‌نیا رضا، ارزیابی ضریب شکست نور در لایه‌های نازک سیلیکا، علوم و مهندسی سطح، ۴۱-۴۸(۱۳۸۸)۵
- [۳] بهاری علی و فدایی سیده مزده، ویژگی‌های نانو ساختار نقره/اکسید سیلیکون، علوم و مهندسی سطح ۴۱-۴۷(۱۳۸۸)۸
- [4] V. Hody-Le Caër, E. De Chambrier, S. Mertin, M. Joly, M. Schaer, J.L. Scartezzini, A. Schüler, *Energ.* 53 (2013) 27-34.
- [5] M.R. Holmes, L. Shuo, J. Keeley, M. Jenkins, K. Leake, H. Schmidt, A.R. Hawkins, *IEEE Photon. Technol. Lett.* 23 (2011) 1466-1468.
- [6] P.A. Premkumar, S.A. Starostin, M. Creatore, H. de Vries, R.M.J. Paffen, P.M. Koenraad, M.C.M. van de Sanden, *Plasma Process. Polym.* 7 (2010) 635-639.

[20] P. Uznanski, B. Glebocki, A. Walkiewicz-Pietrzykowska, J. Zakrzewska, A.M. Wrobel, J. Balcerzak, J. Tyczkowski, Surf. Coat. Technol. 350 (2018)