

# Tetrahedral Amorphous Carbon Films as a Frequency-Increased Interlayer of a Film-Shaped SAW Device

Jia-qi Zhu, Sai Wang, Jie-cai Han, Pei Lei

Center for Composite Materials, Harbin Institute of Technology, Harbin, P.R. China

Email: zhujq@hit.edu.cn

**Abstract:** In order to increase central frequency and intensify the capability of supporting high-power of a film-shaped surface acoustic wave device, Tetrahedral amorphous carbon (ta-C) films deposited using filtered cathodic vacuum arc technology have been applied to the interlayer of surface acoustic wave devices with a ZnO/Si configuration. By means of performing the numerical calculation of the acoustic propagation equations for a multilayered configuration of IDT/ZnO/ta-C/Si, it has been shown that the propagation velocity of SAW was faster and the amplification turned mild with the growing thickness of ta-C films. The frequency responses were characterized by a network analyzer. The mechanical properties of ta-C films were measured using a nanoindenter and the microstructure was analyzed using Raman and XPS spectroscopy. It has been shown that the ta-C interlayer between piezoelectric film and Si substrate can strikingly increase the phase velocity of the surface acoustic wave.

**Keywords:** tetrahedral amorphous carbon (ta-C); surface acoustic wave (SAW) device; frequency-increased; filtered cathodic vacuum arc (FCVA)

## 四面体非晶碳作为薄膜声表面波器件增频衬底的研究

朱嘉琦, 王 赛, 韩杰才, 雷 沛

哈尔滨工业大学复合材料与结构研究所, 哈尔滨, 中国 150080

Email: zhujq@hit.edu.cn

**摘 要:** 为了提高薄膜声表面波器件工作频率, 并增强功率承受能力, 采用过滤阴极真空电弧技术制备四面体非晶碳(ta-C)薄膜, 用作 IDT/ZnO/Si 结构的增频衬底。通过解析层状结构声表面波传播状态方程, 对 IDT/ZnO/ta-C/Si 声表面波器件进行优化设计, 计算表明: 随着 ta-C 层厚的增加, 其增频作用愈加明显, 且在层厚较薄时增幅较大, 当膜厚超过一定程度, 增幅趋缓。利用网络分析仪测试频率响应特征, 利用纳米压痕测试薄膜硬度, 并利用可见光 Raman 和 XPS 表征薄膜的结构。实验表明: ta-C 膜层对 IDT/ZnO/Si 结构声表面波滤波器起到了明显的增频作用, 膜厚越大, 增幅越高, 测试规律与计算结果吻合良好, ta-C 能够代替化学气相沉积多晶金刚石用作薄膜声表面波器件的增频衬底。

**关键词:** 四面体非晶碳; 薄膜声表面波器件; 增频; 过滤阴极真空电弧

### 1 引言

近年来, 随着信息和通讯技术的高速发展, 对声表面波器件的要求越来越高, 使声表面波器件逐步向高频化、小型化、轻质化方向发展, 为了满足发展的需要, 人们提出了薄膜声表面波器件的概念<sup>[1-4]</sup>。在薄膜声表面波器件中, 压电薄膜和非压电衬底形成多层结构, 声表面波传播特性由压电薄膜和衬底共同决定。即使采用相同厚度的同种压电薄膜材料, 由于衬底材料的不同,

声表面波的传播速度也会明显不同。一般来说, 声表面波器件的频率  $f$  正比于材料的声传播速度  $v$ , 反比于叉指换能器的周期或声表面波的波长  $\lambda$ <sup>[5]</sup>, 即:

$$f = v / \lambda \quad (1)$$

在工艺水平一定的前提下, 叉指线条不能无限制的微细化, 否则将导致器件承受功率能力急剧下降, 而且制作工艺难度太大。因此, 提高器件工作频率, 增强功率承受能力的切实可行的途径就是提高声表面波的传播速度。采用快声速衬底就是制备高频薄膜声表面波器件的最有效方法之一。

所有材料中金刚石晶体具有最快的声传播速度, 采

**资助信息:** 国家自然科学基金资助项目 (51072039); 高等学校博士学科点专项科研基金资助项目 (200802131006); 黑龙江省自然科学基金青年基金资助项目 (QC2009C56)

用压电薄膜/多晶金刚石/基底的多层结构能够制成中心频率达 GHz 以上的声表面波器件<sup>[4,6-8]</sup>。但是多晶金刚石薄膜表面过于粗糙以致难以在其表面制备叉指阵列,而且由于极高的硬度导致对其表面进行磨削抛光需要耗费高昂的成本。另外,多晶金刚石还会增加声波的损耗,如果器件的工作波长与多晶金刚石的晶粒尺寸相当,那么由多晶金刚石晶界造成的散射将会成为声表面波传播损失的主要来源<sup>[9,10]</sup>。还有,多晶金刚石在切割过程中产生的微裂纹将会导致频率失真、插损增大等器件品质下降<sup>[11]</sup>。再有,CVD 法沉积的多晶金刚石薄膜制备温度高(界面温度一般在 600 °C 以上)、先驱体溶解后对衬底腐蚀性强,且难以制备大面积厚度均匀的金金刚石薄膜(目前多晶金刚石薄膜的最大尺寸不超过 Φ4" ),这些因素都制约了多晶金刚石作为薄膜声表面波器件增频衬底的应用<sup>[12]</sup>。

但是非晶金刚石却可以克服化学气相沉积金刚石的这些缺点。采用过滤阴极真空电弧技术能够在室温下获得大面积(Φ300 mm)且具有光滑表面(Rq<0.5 nm)的四面体非晶碳薄膜(ta-C)。由于高比例的四配位杂化组成,ta-C 薄膜具有许多能与金刚石晶体相媲美的优异性能,如高弹性模量使其具有比其他类金刚石更快的声传播速度<sup>[13]</sup>。另外,由于非晶态特性,也避免了因晶界而产生的散射损失。为此,本文就是要将 ta-C 薄膜用作薄膜声表面波器件的压电材料衬底,采用 IDT/ZnO/ta-C/Si 形式的层状结构,通过解析声表面波传播状态方程进行结构设计,以期获得增频效果。

## 2 ZnO/ta-C/Si 层状结构中声表面波的特性

### 2.1 基本原理

声表面波沿着  $x_1$  方向传播,并在  $x_3$  方向衰减,  $x_2$  方向垂直于  $x_1$  和  $x_3$  所在平面。利用 Campbell & Jones 模型进行数值计算,为了简便起见,仅考虑对过滤电弧沉积工艺有直接指导意义的膜厚对声波传播速度的影响。描述压电各向异性介质中耦合波状态方程及其通解如方程(2)~(5)所示<sup>[14-16]</sup>:

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} - c_{ijkl}^E \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_k} - e_{kij} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_k \partial x_j} = 0 \quad (2)$$

$$e_{jkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_j} - \varepsilon_{jk} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_k \partial x_j} = 0 \quad (3)$$

其中,  $\rho$ ,  $c$ ,  $e$  和  $\varepsilon$  分别代表密度、弹性常数、压电常数和介电常数。表达机械位移  $U$  和电势  $\Phi$  的通解如下:

$$U_i = \sum_{n=1}^6 C_n \alpha_i^{(n)} \exp\{j[\omega t - K(l_1 x_1 + l_2 x_2 + l_3^{(n)} x_3)]\} \quad (4)$$

$$\Phi = \sum_{n=1}^6 C_n \alpha_4^{(n)} \exp\{j[\omega t - K(l_1 x_1 + l_2 x_2 + l_3^{(n)} x_3)]\} \quad (5)$$

其中,  $C$  为弹性刚度常数,  $C_n \alpha_4^{(n)}$  为波的振幅,  $l_{1,2,3}$  为波传播的方向余弦。如式(6)和式(7)所示,  $\omega$  和  $K$  分别为角频率和波数。

$$\omega = 2\pi f \quad (6)$$

$$K = 2\pi / \lambda \quad (7)$$

对 ta-C 增频衬底而言,声表面波传播状态方程如式(8)和式(9)所示:

$$U_i^{ta-C} = \sum_{n=1}^6 C_n^{ta-C} \alpha_i^{ta-C(n)} \exp\{j[\omega t - K(l_1 x_1 + l_2 x_2 + l_3^{(n)} x_3)]\} \quad (8)$$

$$\Phi^{ta-C} = \sum_{n=1}^6 C_n^{ta-C} \alpha_4^{ta-C(n)} \exp\{j[\omega t - K(l_1 x_1 + l_2 x_2 + l_3^{(n)} x_3)]\} \quad (9)$$

根据上述 IDT/ZnO/ta-C/Si 层状结构的机械和电学边界条件,代入密度、弹性常数、压电常数、介电常数等材料常数<sup>[17,18]</sup>,解析方程,从而获得声表面波传播速度与膜层参数(如膜厚)的关系。

### 2.2 层厚对相速度的影响规律

计算表明,无论声表面波器件在基波还是在一次谐波状态下工作,也无论 ta-C 增频衬底层厚多少,随着 ZnO 压电薄膜厚度的增加,声表面波的传播速度都将下降。从保证声表面波快速传播的角度,压电薄膜不宜过厚,当在一次谐波工作状态下以  $KH_{ZnO} < 0.5$  为宜。

ZnO/ta-C/Si 结构中  $KH_{ta-C}$  与相速度的关系如图 1 所示。在压电薄膜厚度相同的情况下,无论在一次谐波还是在基波状态下工作,ta-C 增频衬底的厚度越大,声表面波的传播速度就越快。但是由于声表面波的能量大部分集中于近表面区域,随着 ta-C 厚度超过一定程度以后,加速声波传播的幅度趋缓。由计算可知,当  $KH_{ta-C} > 3$  以后,几乎可以忽略硅基底的影响。在一次谐波状态下工作,当  $KH_{ta-C} < 1$  时,ta-C 厚度的增加对提高声速的贡献明显,而且声速显著高于基波状态。

ta-C 薄膜的诸多性能都可归因于薄膜的杂化组成。薄膜中四配位原子越多,薄膜的弹性模量就越高,反之亦然。既然 ta-C 薄膜的弹性常数对杂化比例非常敏感<sup>[13]</sup>,那么利用声表面波传播状态方程中弹性刚度常数与声速之间的关系也可以近似反映薄膜杂化组成对声速的影响。计算和实验表明,薄膜中四配位原子

比例越高，声波的传播速度就越快。但是高的四配位杂化比例往往伴随着高的残余压应力，并对薄膜与基底的结合造成威胁。因此，在制备 ta-C 增频衬底时，应该在保证薄膜与基底结合良好的前提下，高四配位杂化 ta-C 膜层尽可能厚。目前我们采用能量梯度下降的沉积工艺，在未经退火处理的条件下将富 sp<sup>3</sup> 杂化的置于最外，已经制备出厚度超过 2 μm 以上且附着良好的 ta-C 膜。

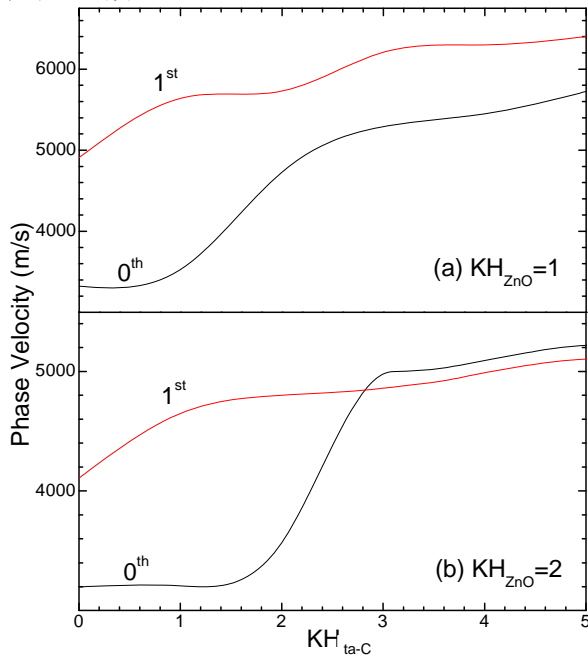


Fig.1 Calculated  $KH_{ta-C}$  dependence of phase velocities in a ZnO/ta-C/Si configuration at (a)  $KH_{ZnO}=1$  and (b)  $KH_{ZnO}=2$ .

图 1 当(a)  $KH_{ZnO}=1$  和(b)  $KH_{ZnO}=2$  时, ZnO/ta-C/Si 结构中  $KH_{ta-C}$  与相速度的关系。

### 3 试验

利用离面双弯过滤阴极真空电弧 (FCVA) 类金刚石薄膜沉积系统制备样品。在相同的沉积时间内，固定脉冲频率 1500 Hz，脉宽 25 μs。利用机械引弧机构每隔 15 s 定时触发电弧，确保高纯（纯度为 99.9999%）石墨阴极的靶面平整和电弧的持续稳定燃烧。沉积前，用丙酮超声清洗 Φ51 mm 的 p (100) 单晶硅衬底 15 min，并用 Kaufman 氩离子枪在相同的电源参数下刻蚀 5 min。电弧电流设置为 60 A，沉积前本底真空度为 0.3 mPa，沉积时由于阴极放气真空度将有所升高。为了保证沉积和刻蚀的均匀性，衬底卡盘以 30 r/min 的速度旋转。沉积时，对衬底施加相同的直流脉冲负偏压 (-80 V)，获得厚度分别为 70 nm, 140 nm, 210 nm 和 350 nm 的 1~4 号的 ta-C 薄膜样品，

5 号样品采用能量梯度下降工艺沉积，最外层采用 80 V 负偏压沉积有 70 nm 的富 sp<sup>3</sup> 杂化层。

ZnO 薄膜利用电子科技大学的 ULVAC 射频磁控溅射薄膜沉积系统制备。沉积时，利用长靶基距 (LTS) 技术提高 ZnO 薄膜的均匀性，且仓内压强控制在 0.2 Pa。用质量流量计调节氩气与氧气的流量比为 20/8，且衬底温度保持在 200 °C。采用剥离工艺方法在 ZnO 表面形成叉指换能器。叉指线宽为 2.0 μm，叉指对数为 20，采用一次谐波工作状态。利用网络分析仪测试 IDT/ZnO/ta-C/Si 结构的声表面波样件的频率响应特征。利用纳米压痕测试薄膜硬度，并利用可见光 Raman 和 XPS 表征薄膜的结构。

### 4 结果与讨论

图 2(a)显示了 ZnO/ta-C/Si 层状结构的扫描电镜截面照片。可见 ta-C/ZnO 界面平整，其均方根表面粗糙度只有几埃，这是化学气相沉积多晶金刚石薄膜难以做到的。制成 IDT/ZnO/ta-C/Si 结构声表面波滤波器频率响应测试件的外观见图 2(b)。

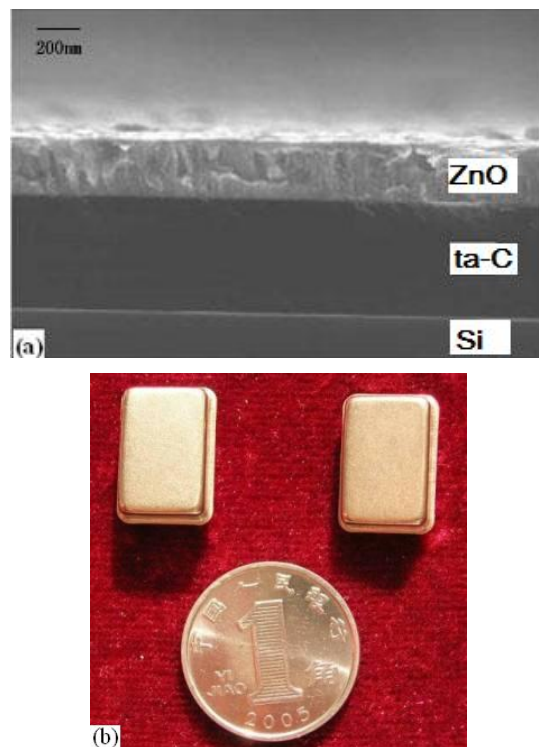


Fig.2 (a) The SEM cross-section and (b) a picture of encapsulated SAW filters of a configuration of ZnO/ta-C/Si.

图 2 (a)ZnO/ta-C/Si 层状结构的截面照片和(b)IDT/ZnO/ta-C/Si 声表面波滤波器外观图。

IDT/ZnO/ta-C/Si 结构声表面波滤波器频率响应特征的测试数据见表 1。可见 ta-C 衬底显著提高了器件中声表面波的传播速度，随着膜厚的增加，相对空硅基底的增幅越大。为了更清楚地表示 ta-C 薄膜的增频作用，将表 1 中的数据绘于图 3。

Table 1 Frequency response of the SAW filters with a configuration of ZnO/ta-C/Si<sup>\*</sup>.

表 1 具有 ZnO/ta-C/Si 结构声表面波滤波器的频率响应特性

序号	ta-C 膜厚 (nm)	中心频率 (MHz)	相速率 (m/s)
	Bare Si substrate	574.00	4592
1	70	596.50	4772
2	140	603.50	4828
3	210	612.00	4896
4	350	617.51	4940
5	550**	605.06	4840

\* ZnO 压电层厚度大约 200 nm.

\*\* 此厚度 ta-C 膜采用梯度下降偏压制备，其最外层采用富 sp<sup>3</sup> 条件沉积厚度约为 70 nm.

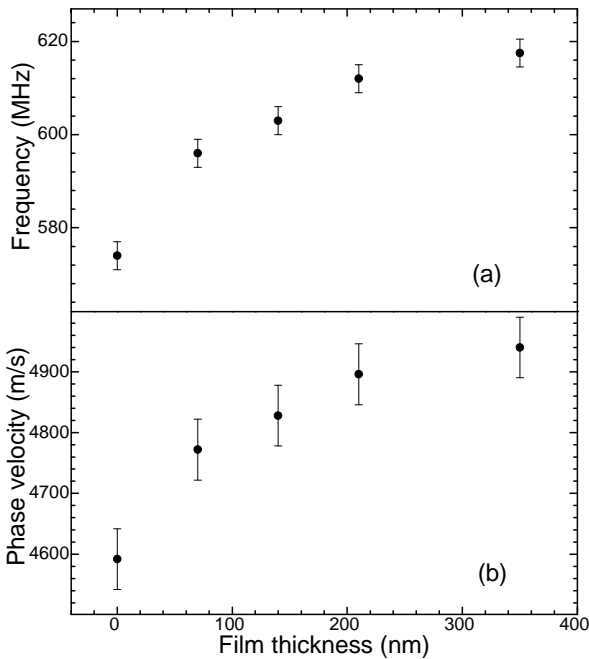


Fig.3 The variations of (a) center frequency and (b) phase velocity as functions of the thickness of ta-C films in ZnO/ta-C/Si SAW filters.

图 3 不同厚度增频衬底 ZnO/ta-C/Si 声表面波滤波器的(a)中心响应频率和(b)相速度.

随着 ta-C 薄膜厚度的增加，声表面波传播速度加快，实验规律与计算结果相符。4 号样件增频衬底名

义厚度为 350 nm，其中心频率的增加幅度可达 8%。但是，5 号样件的厚度虽然最高，但是其增频作用还不及 3 号和 4 号样件。5 号样件的 ta-C 增频衬底只有最外层 70 nm 具有与其他样件相同的四配位杂化含量，由外至硅基底四配位杂化含量渐次降低。这说明声表面波的传播速度还与薄膜的杂化组成密切相关，利用声表面波这种特性可以测试超薄 ta-C 薄膜的微结构<sup>[19]</sup>。

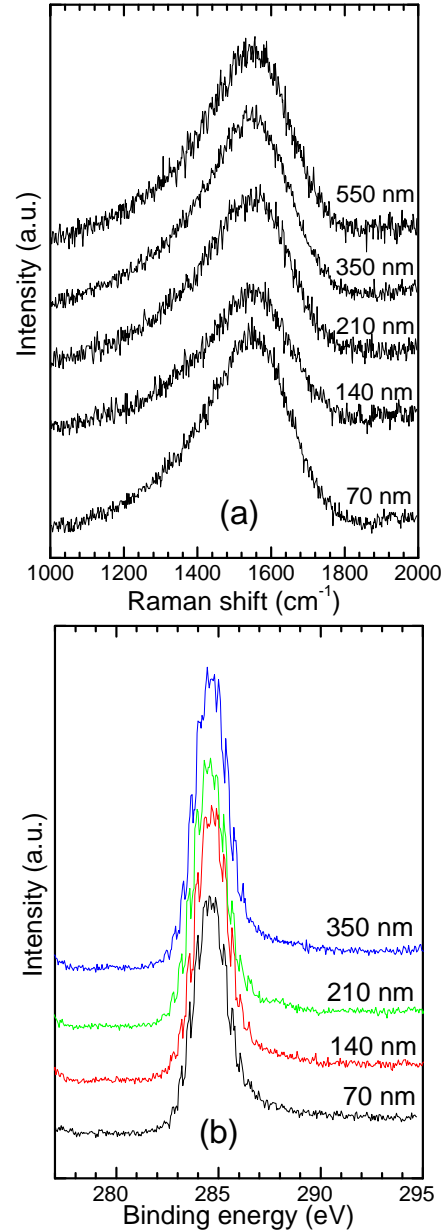


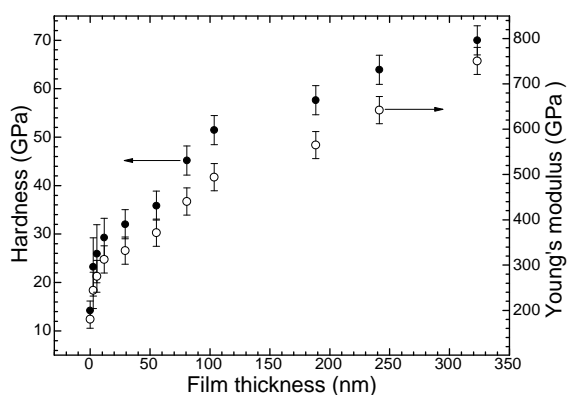
Fig.4 (a) Raman spectra and (b) XPS spectra of the ta-C films with different thicknesses for the SAW devices with increased frequency.

图 4 不同厚度 ta-C 薄膜的(a)拉曼光谱和(b)X 射线光电子谱.



图4展示了用作增频衬底不同厚度 ta-C 薄膜的拉曼光谱和 X 射线光电子谱。可见,随着膜厚的增加, C1s 峰位保持在~285.0 eV 几乎不变。除 70 nm 厚 ta-C 薄膜拉曼光谱由于膜厚与激光波长相干,其光谱线型略有差异,其他不同厚度薄膜拉曼光谱线型保持不变。利用线形背底的 Breit-Wigner-Fano (BWF)函数进行拟合,获得与薄膜微结构十分敏感的耦合系数。实验表明,随着膜厚的变化,耦合系数保持不变。这些结果表明不同膜厚 ta-C 薄膜的结构是稳定的。

实际上,随着 ta-C 膜厚增加而增强的增频作用可归因于由 ta-C 与 Si 基底的复合机械性能。图5显示膜厚增加,硬度和杨氏模量也在增加。当膜厚超过 300 nm 时,硬度接近 70 GPa,杨氏模量超过 750 GPa。纳米压痕仪获得的 ta-C 与 Si 基底的复合硬度,膜厚越薄,软基底的影响越显著。



**Fig.5 The Variations of hardness and Young's modulus as functions of ta-C film thickness. Every point represents the arithmetic mean of ten separate indents and the error bars are calculated from the standard deviation of the ten results.**

**图5 不同厚度 ta-C 薄膜的硬度和杨氏模量.**

## 5 结论

1. 解析 IDT/ZnO/ta-C/Si 层状结构声表面波器件中声波传播状态方程的结果表明,随着 ta-C 层厚的增加,其增频作用愈加明显,且在层厚较薄时增幅较大,当膜厚超过一定程度,增幅趋缓。

2. IDT/ZnO/ta-C/Si 层状结构声表面波滤波器的频率响应特性测试结果表明, ta-C 膜层对 IDT/ZnO/Si 结构声表面波滤波器起到了明显的增频作用,膜厚越大,增幅越高,测试规律与计算结果吻合良好, ta-C 能够代替化学气相沉积多晶金刚石用作薄膜声表面波器件的增频衬底。

## 6 致谢

感谢电子科技大学微固学院杨成韬教授提供的重要数据和有益讨论,并感谢哈尔滨工业大学和吉林大学相关测试人员给与的帮助和支持。

## References (参考文献)

- [1] Meier H, Baier T, Riha G, [J]. *Microw. Theory Tech.*, 2001, 49:743~748.
- [2] Bechteler T, Yenigün H, [J]. *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, 2003, 51:1584~1590.
- [3] Springer A, Hollerweger F, Weigel R, et al. [J]. *Microw. Theory Tech.*, 1999, 47:2312~2316.
- [4] Nakahata H, Hachigo A, Itakura K, et al. [J]. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 2000, 349~352.
- [5] Milstein L, Das P, [J]. *IEEE Commun. Mag.*, 1979, 17:25~33.
- [6] Hachigo A, Malocha D, [J]. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.*, 1998, 45:660~666.
- [7] Dreifus D, Higgins R, Henard R, et al. [J]. *IEEE Ultrasonics Symposium*. 1997, 191~194.
- [8] Nakahata H, Fujii S, Higaki K, et al. [J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2003, 18:S96~S104.
- [9] Uemura T, Fujii S, Kitabayashi H, et al. [J]. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 2002, 431~434.
- [10] Lehmann G, Schreck M, Hou L, et al. [J]. *Diam. Relat. Mater.*, 2001, 10:686~692.
- [11] Seo S, Shin W, Park J. [J]. *Thin Solid Films*, 2002, 416:190~196.
- [12] Fujii S, Seki Y, Yoshida K, et al. [J]. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 1997, 183~186.
- [13] Schneider D, Meyer C, Mai H, et al. [J]. *Diam. Relat. Mater.*, 1998, 7:973~980.
- [14] Campbell J, Jones W, [J]. *IEEE Trans. Son. Ultrason.*, 1968, 15:209.
- [15] Hashimoto K, [M]. Berlin Heidelberg:Springer-Verlag, 2000: 208~257.
- [16] Nakahata H, Hachigo A, Higaki K, et al. [J]. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.*, 1995, 42:362~375.
- [17] Beghi M, Ferrari A, Bottani C, et al. [J]. *Diam. Relat. Mater.*, 2002, 11:1062~1067.
- [18] Ferrari A, Robertson J, Beghi M, et al. [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, 75:1893~1895.
- [19] Pastorelli R, Ferrari A, Beghi M, et al. [J]. *Diam. Relat. Mater.*, 2000, 9:825~830.