



Doctoral Thesis

RF sputter deposition of waveguiding epitaxial LiNbO_3 and KNbO_3 thin films

Author(s):

Schwyn Thöny, Silvia Brigitte

Publication Date:

1992

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000668638> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 9929

**RF SPUTTER DEPOSITION OF WAVEGUIDING EPITAXIAL
LiNbO₃ AND KNbO₃ THIN FILMS**

A dissertation submitted to the
Swiss Federal Institute of Technology
Zürich

for the degree of Doctor of Natural Sciences

presented by

SILVIA BRIGITTE SCHWYN THÖNY

Dipl. phys. ETH
born February 14, 1962
citizen of Zürich and S-chanf

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. P. Günter, examiner
Dr. H. W. Lehmann, co-examiner

1992

Abstract

Due to the rapid development of optical communications technology, the field of integrated optics is currently of great interest. Therefore, the investigation and fabrication of novel materials for this type of application is of importance. LiNbO_3 and KNbO_3 are both possible candidates for an application in integrated optics due to their excellent electro-optic and nonlinear optical properties. This PhD project therefore represents a contribution to this field of research.

The aim of this work was to investigate the growth of epitaxial waveguiding LiNbO_3 and KNbO_3 layers by rf sputter deposition and to characterize the physical and optical properties of these layers. The substrates used for the heteroepitaxial growth were sapphire and LiTaO_3 on the one hand and spinel and MgO on the other hand.

Two basic chapters of this thesis discuss the properties of bulk LiNbO_3 and KNbO_3 as well as the theoretical aspects of sputtering and layer growth. These theoretical considerations are then used to design and construct a new sputtering system which meets the special requirements for the growth of single crystalline layers.

The next two chapters discuss the various characterization methods and their results focusing on the morphology, the crystallinity, the chemical composition and the optical properties. In the following these results will be presented in greater detail.

Scanning electron micrographs showed in the case of LiNbO_3 that the surface roughness depends on the growth parameters. Minimum roughness was obtained at a substrate temperature of 500°C and a growth rate of $0.2\text{-}0.4\text{ nm/min}$. X-ray diffraction measurement indicated single crystalline growth and hexagonal crystal structure if the layers were deposited at a substrate temperature above 450°C . However, transmission electron microscope investigations revealed a domain structure with a lateral width of 100 nm . Small area electron diffraction showed an identical diffraction pattern in neighbouring domains except for a star-like pattern in \pm first and third order in the c -direction, which was attributed to antiphase domains. The x-ray photoelectron spectroscopy showed a stoichiometric chemical composition of the films. The refractive indices were determined by optical spectrometry and by waveguiding experiments. This yielded an ordinary refractive index which is close to the bulk value whereas the extraordinary index is too low compared with this value. In addition, the attenuation of the guided wave was determined and yielded best values in the range of 5 dB/cm depending on the growth parameters.

The same properties were also investigated for KNbO_3 , however different methods were used corresponding to the specific material properties. The surface was cha-

racterized by an atomic force microscope which showed a surface roughness in the range of 100 nm in horizontal and 10 nm in vertical dimension. Furthermore, x-ray diffraction investigations revealed that above a substrate temperature of 570 °C single crystalline films were obtained which have tetragonal crystal structure corresponding to the high temperature phase (220-440°C) of the bulk material. However, the observed phase in the film has lattice constants which are slightly larger than the values of the tetragonal phase extrapolated to room temperature. The growth of stoichiometric films was a very intriguing experimental problem which could only be solved by using pressed targets prepared in house with a great surplus of potassium (1 mol KNbO_3 :1 mol K_2CO_3). Rutherford backscattering experiments were performed to determine the chemical composition. Moreover, a considerable reduction of the signal from films aligned along the (001)-direction in channeling experiments indicated good crystal quality. The refractive indices of the layers determined by optical spectroscopy and waveguiding experiments yielded, for the ordinary index, a value which is close to the value of the tetragonal phase extrapolated to room temperature, whereas the extraordinary value is too low. The attenuation of the guided waves was surprisingly low with values in the range of 1-1.5 dB/cm at $\lambda=633\text{nm}$. Finally, the nonlinear optical susceptibility tensor element $d_{33}=5\text{ pm/V}$ was determined from a Maker fringe experiment at $\lambda=1.06\text{ }\mu\text{m}$. This value is lower than the 15.8-27 pm/V which are reported for orthorhombic KNbO_3 .

Summarizing and discussing this work it became apparent that the results of this project are promising in view of the applications in integrated optics mentioned in the introduction. The results obtained in growing LiNbO_3 films indicate an improvement in the optical and crystal quality of the layers compared with previously published work. In the case of KNbO_3 it was possible for the first time to grow thin heteroepitaxial layers which have not only physical properties similar to single crystals but also very interesting optical properties.

Zusammenfassung

Aufgrund der Entwicklung der optischen Kommunikations-Technologie gewinnt das Gebiet der integrierten Optik gegenwärtig stark an Bedeutung, so dass die Untersuchung und Herstellung neuer Materialien für diese Anwendungen bedeutsam ist. Die ausgezeichneten elektro-optischen und nichtlinear-optischen Eigenschaften von LiNbO_3 und KNbO_3 machen diese beiden Materialien zu möglichen Kandidaten für eine Verwendung in der integrierten Optik. In diesem Forschungszusammenhang steht auch das vorliegende Dissertationsprojekt.

Das Ziel dieser Arbeit war die Herstellung epitaktischer wellenleitender LiNbO_3 und KNbO_3 Schichten durch Hochfrequenz-Kathodenzerstäubung sowie die Charakterisierung der so hergestellten Schichten bezüglich ihrer physikalischen und optischen Eigenschaften. Als Substrate für das heteroepitaxiale Schichtwachstum wurden einerseits Saphir und LiTaO_3 und andererseits Spinell und MgO verwendet.

Zwei grundlegende Kapitel dieser Dissertation beschäftigen sich mit den Eigenschaften von LiNbO_3 und KNbO_3 Einkristallen sowie mit den theoretischen Aspekten der Kathodenzerstäubung und des Schichtwachstums. Diese theoretischen Überlegungen gingen ein in die Planung und Konstruktion eines neuen Sputter-Systems, welches jene speziellen Anforderungen erfüllt, die das Wachstum einkristalliner Schichten stellt, und das deshalb ebenfalls ausführlich diskutiert wird.

In zwei weiteren Kapiteln werden die verschiedenen Charakterisierungsmethoden und deren Resultate besprochen, wobei die untersuchten Eigenschaften insbesondere die Morphologie, Kristallstruktur, chemische Zusammensetzung sowie die optischen Eigenschaften umfassen. Im folgenden soll auf die Ergebnisse im einzelnen eingegangen werden.

Rasterelektronenmikroskop Aufnahmen zeigen im Fall von LiNbO_3 , dass die Oberflächenrauigkeit von den Wachstumsparametern abhängt und dass die kleinste Rauigkeit bei einer Substrattemperatur von $500\text{ }^\circ\text{C}$ und einer Wachstumsrate von $2\text{--}4\text{ \AA}/\text{min}$ erreicht wird. Die kristalline Struktur wird mittels Röntgenbeugung ermittelt; die Messung ergibt, dass die Schichten bei erhöhter Substrattemperatur ($T > 450\text{ }^\circ\text{C}$) einkristallin sind und eine hexagonale Struktur besitzen. In der Transmissions-Elektronen-Mikroskopie lassen sich jedoch Bereiche mit einer Breite von ca. 100 nm unterscheiden. Die Feinbereichs-Elektronen-Beugung in benachbarten Domänen ergibt ein nahezu identisches Bild, nur in $\pm 1.$ und $3.$ Ordnung in c -Richtung erscheint eine sternartige Aufspaltung des Punktes, was auf eine Antiphasen-Domäne hinweist. Die Röntgenphotoelektron-Spektroskopie an diesen Schichten weist eine stöchiometrische chemische Zusammensetzung nach. Hierauf werden die optischen Eigenschaften untersucht. Die Brechungsindizes werden aus Spektrometrie- und Wellenleiterexperimenten bestimmt und liegen für den ordentlichen Index

nahe dem Wert des einkristallinen Materials; der Wert des ausserordentlichen Index liegt jedoch zu tief. Aus dem Wellenleiterexperiment kann ferner auch die Dämpfung der geführten Moden bestimmt werden mit besten Werten im Bereich von 5 dB/cm, wobei auch hier eine Abhängigkeit von den Wachstumsparametern festgestellt wird.

Im Fall von KNbO_3 werden dieselben Eigenschaften der Schichten wie bei LiNbO_3 untersucht, doch sind entsprechend den spezifischen Materialeigenschaften andere Charakterisierungsmethoden verwendet worden. Die Untersuchung der Oberfläche mittels des Atomkraftmikroskops ergibt, dass die Schichten nur gerade eine Rauigkeit im Bereich von 10 nm in vertikaler und 100 nm in horizontaler Richtung haben. Ferner zeigt die Röntgenuntersuchung der Filme, dass sich bei erhöhter Substrattemperatur ($T > 570^\circ\text{C}$) einkristalline Schichten bilden. Diese haben eine tetragonale Kristallstruktur, wie sie der Hochtemperaturphase ($220^\circ\text{--}440^\circ\text{C}$) des Einkristalls entspricht, wobei das Schichtmaterial jedoch gegenüber den auf Zimmertemperatur extrapolierten Gitterkonstanten vergrösserte Werte aufweist. Die Herstellung stöchiometrischer KNbO_3 Schichten stellt ein besonderes Problem dar, das erst durch die Verwendung von selbst gepressten Targets mit einem massiven Kaliumüberschuss (1 Mol KNbO_3 :1 Mol K_2CO_3) gelöst werden konnte, wie entsprechende Rutherford Rückstreu-Experimente bestätigten. Channeling-Experimente zeigen sodann, anhand der Reduktion des Signals in der (001)-Richtung, eine gute Kristallqualität der Schichten. Die Brechungsindizes der KNbO_3 Schichten, die durch Spektroskopie sowie durch Wellenleitung bestimmt wurden, ergeben für den ausserordentlichen Index einen Wert, der nahe beim extrapolierten Wert liegt, den man für einen tetragonalen Kristall bei Zimmertemperatur erwarten würde; der Wert des ordentlichen Index liegt verglichen mit diesem Wert dagegen zu tief. Die Verlustmessungen weisen dabei erstaunlich tiefe Werte von 1-1.5 dB/cm auf bei $\lambda = 622$ nm. Weiter ergibt ein 'Maker Fringe' Experiment eine nichtlinear optische Suszeptibilität von $d_{33} = 5$ pm/V bei $\lambda = 1.06\mu\text{m}$. Dieser Wert ist tiefer als die für orthorhombisches KNbO_3 tabelierten Koeffizienten, welche im Bereich von 15.8-27 pm/V liegen.

Aus der abschliessenden Zusammenfassung und Diskussion der Arbeit geht hervor, dass die Untersuchungsergebnisse dieses Forschungsprojekts insgesamt als vielversprechend im Hinblick auf die eingangs erwähnten Anwendungen in der integrierten Optik betrachtet werden können: So haben die Resultate, die bei der Herstellung der LiNbO_3 Schichten erhalten wurden, eine verglichen mit publizierten Arbeiten wesentliche Verbesserung der Schichtqualität aufgezeigt. Im Fall von KNbO_3 gelang es zum ersten Mal dünne heteroepitaktische Schichten herzustellen, die darüber hinaus nicht nur gute physikalische sondern auch interessante optische Eigenschaften aufweisen.