Vol. 19, No. 5 October, 1995

# KrF 准分子激光烧蚀氧化镁单晶的实验研究

范永昌 P.E. 戴尔\* P.H. 凯夷\*

(华中理工大学激光技术国家重点实验室,武汉,430074)

\*(英国赫尔大学应用物理系)

摘要:本文采用光谱学和离子探针等检测手段,对 KrF 准分子激光烧蚀氧化镁单晶的物理过程进行了实验研究。结果表明,激光烧蚀等离子体内的主要粒子形态是镁原子和一价的镁离子,其粒子的动能在 30~45eV 范围。从烧蚀部位的扫描电镜形貌分析表明,在激光能量密度近于烧蚀阈值时,激光辐照的氧化镁单晶表面呈现出一定程度的层离特征。

关键词: 激光烧蚀 氧化镁单晶 光谱测量

#### Experiment studies of laser ablation of magnesium oxide crystal

Fan Yongchang, P. E. Dyer\*, P. H. Key\*

(National Laboratory of Laser Technology, HUST)

\* (Applied Physics Department, University of Hull, United Kingdom)

Abstract: The Excime laser ablation of Magnesium oxide crystal was studied by emission spectroscopy and ion probe diagnostic techniques. The experiment results show that the main particle species existed in the laser ablated plasma are Mg atoms and Mg<sup>+</sup> ions. and their kinetic energy is in the range of 30 to 45eV. A threshold fluence for significant material removal of 3 J/cm<sup>2</sup> was determined by ablation depth rate measurement, and below this value, surface damage in the form of micro-crack was observed.

Key words: laser ablation MgO crystal spectroscopic analysis

# 一、引

由于氧化镁晶体可以作为激光烧蚀沉积 MgO 薄膜的靶材<sup>[1]</sup>,因而从实验上研究准分子激光烧蚀氧化镁单晶的物理过程及其基本特点和规律,对于采用激光沉积法制备出高质量的 MgO 薄膜缓冲层和绝缘层具有指导意义。同时这种研究也将为高温超导——MgO 多层膜结构体系后续的激光制版及微加工提供实验参数。

基于以上考虑,作者采用 248 mm KrF 准分子激光对氧化镁单晶进行了烧蚀研究,首次观察到氧化镁单晶表面呈现出的层离特征。

- 4 Hopkins J A, McCay J D, McCay M H et al. Proc of the 1993 ASME Winter Annual Meetings, New Orleans, LA, USA, 1993:17~24
- 5 Cuvelier C, Segal A, Van Steenhoven A A. Finite element methods and Navier-Stokes equations. Holland; D. Reidel Publishing Company, 1986; 263~287

### 二、实验方法

KrF 准分子激光烧蚀氧化镁单晶实验研究的装置及检测原理示于图 1, KrF 准分子激光 (波长 248nm, 脉宽 28ns)单脉冲能量 250mJ,通过真空室的窗口垂直照射在氧化镁单晶的表面 (100)上。当激光能量密度高于烧蚀阈值时,烧蚀部位表面的上方形成强烈的发光等离子体 羽,通过透镜聚光后经光导纤维输入单色仪,光电倍增管的输出由记录仪记录下来或由快速存 贮示波器显示出来。

光谱测量时,聚光镜可沿着等离子的延伸方向移动,并可调整烧蚀室内的充氧压,以便于对等离子体羽发光的空间特征及光谱强度随氧压的变化进行研究。当聚光镜固定于距靶面的某一位置时,通过单色仪对波长的扫描,可测出相应位置的激光烧蚀等离子体发射光谱<sup>[2]</sup>。对光谱线进行标识和归属可确定发光粒子的种类和形态。

在时间分辨光谱的测量中,将单色仪的波长

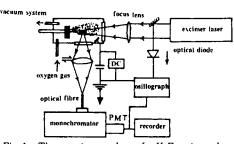


Fig. 1 The experiment scheme for KrF excimer ablation of MgO crystal and the plasma emission spectroscopic and ion probe analysis

读数调整到某一发光粒子的特征谱线位置,光电倍增管的输出进入快速存贮示波器 (Tectronix7834,放大器 7A15A,输入阻抗 50Ω),同时用响应时间为 1ns 的光电二极管接收激光束的部分分光,其光电二极管的输出信号用以触发存贮示波器。根据聚光镜距靶面不同距离时,由示波器测得的特征谱线光信号延迟时间,可以推算出粒子的膨胀速度<sup>[3]</sup>。

在对激光烧蚀等离子体中的离子进行检测时,离子收集极上加上-80V的偏压,离子收集极可以在包含烧蚀点及入射光束的平面内以烧蚀点为圆心旋转,其旋转半径可调。同样,用前述的光电二极管输出信号触发快速存贮示波器,离子探针的离子流信号作为示波器的输入,通过离子探针的旋转,可以测得离子的角分布。相继改变探针距靶面的距离即可获得离子的速度分布<sup>[4]</sup>。每次烧蚀后,用扫描电镜对烧蚀部位的微结构和形貌进行观察。

## 三、实验结果

图 2 给出 MgO 单晶激光烧蚀速率(单个脉冲光由表面移去一薄层物质的厚度)与激光能量密度取对数值的实验曲线。由图 2 可以看出,实验数据能很好地拟合成直线,说明实验结果符合贝尔吸收定律。故烧蚀速率 X 可以表示为:  $X = \log(F/F_t)/\alpha$ ,式中, $\alpha$  为有效吸收系数,由图 2 中直线的斜率计算出  $\alpha$  为  $4 \times 10^4 \mathrm{cm}^{-1}$ 。 $F_t$  为激光烧蚀能量密度阈值,近似为  $3\mathrm{J/cm}^2$ 。

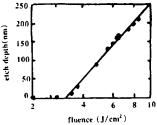


Fig. 2 Etch depth per pulse of single crystal (100) MgO as a function of KrF laser fluence

由显微镜对 MgO 晶体烧蚀部位的观察发现, 当激光辐照能量密度在 1~3J/cm² 范围内时, 晶面沿着正方晶格解理面的方向出现规则的微裂纹, 这种微裂纹的密度随着第一个辐照脉冲光作用后的脉冲数而增大。在更低的激光能量密度(<0.5J/cm²)下, 多个激光脉冲连续辐照后的 MgO 表面, 也观察到了这类微裂痕。由此可以认为, 微裂的形成是激光的热作用在表面上产生的应力效应所致。

对 MgO 单晶采用低能量密度 KrF 激光和紫外灯的透射小信号测量得出,未受紫外光辐

照的新鲜晶体,对 248nm 光的吸收系数是~10cm<sup>-1</sup>,当 MgO 晶体长时间曝光于小于损伤阈值的紫外光辐照后,其吸收系数增加到最大的~25cm<sup>-1</sup>。这一吸收系数较由烧蚀速率测量获得的吸收系数(4×10<sup>4</sup>cm<sup>-1</sup>)小得多。这是由于在高激光能量密度条件下,晶体表面薄层发生光击穿导致吸收系数迅速增加,并由此而形成烧蚀等离子体。

MgO 单晶的激光烧蚀等离子体发射光谱如图 3 所示, 其谱线的辨识确定主要的发光粒子为中性的镁原子 Mg(I), 一价的镁离子 Mg(I), 及其氧离子 O(II)。

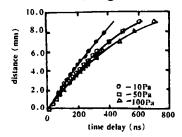


Fig. 4 Distance-time plots for Mg (II) from time-resolved emission spectroscopy of KrF laser ablation of MgO in oxygen

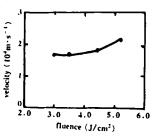


Fig. 5 Velocity of Mg( I ) as a function of KrF laser fluence during ablation of MgO from time-resolved spectroscopy at 1mm from target

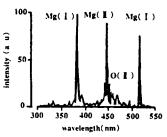


Fig. 3 Emission spectrum of plume from KrF laser ablation of MgO

图 4 和图 5 为距靶面不同位置处测得的时间分辨光谱结果。由图 4 所示,随着烧蚀室内背景气压的增大,出射粒子的速度将迅速减小。图 5 为在距靶面 1mm 处测得的镁离子Mg(II)飞行速度随激光能量密度的变化曲线,从图中可以看出当激光能量密度由烧蚀阈值 3J/cm² 增加到 5.2J/cm²

时,相应的粒子速度仅从  $1.75 \times 10^4$  m/s 增加到  $2.2 \times 10^4$  m/s。类似地采用离子探针测得烧蚀 阈值时 Mg( II )离子的飞行速度为  $2.1 \times 10^4$  m/s,这一测量值较时间分辨光谱测量值较高的原因可归因于离子探针负偏压的加速作用。

图 6 为采用离子探针方法测得的激光烧蚀等离子体中离子的角分布曲线。测量中激光能量的变化范围为由  $3J/cm^2$  至  $5J/cm^2$ ,旋转半径变化范围为  $3cm\sim5cm$ ,因而在某一固定的角度  $\theta$ (靶面法线方向为  $0^{\circ}$ ),对应不同激光能量密度和不同半径 R 值,测得离子流信号变化范围由竖直的短线表示、短线中间位置的实心圆为信号的平均值。为便于比较,图中同时以实线划出了  $cos^n\theta$  的函数曲线(n=20)。可以看出离子的角分布数据与  $cos^n\theta$  角分布曲线符合得很好。这种离子突出的前向分布特征可归因于较大的烧蚀面积效应。

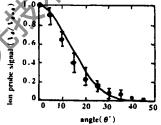


Fig. 6 Angular distribution of non-species resolved ions in ablation plume from KrF laser irradiation of MgO

最后,要指出的是,当激光能量密度在烧蚀阈值以下时,从烧蚀部位的扫描电镜形貌分析表明,激光烧蚀的氧化镁单晶呈现出一定程度的层离特征。同时在较低激光能量密度条件下,MgO表面将产生微裂及层离的实验结果表明,采用激光烧蚀方法对沉积在 MgO 基片的高温超导薄膜进行显微制版及其微加工是一项困难的技术。

#### 参考文献

- 1 Fork D K, Ponce F A, Tramontana J C et al. A P L, 1991;58:2294
- 2 Geyer T J, Weimer W A. Appl Spectro, 1990;44(10):1659
- 3 Dyer P E. A P L, 1988;53(6):534
- 4 Von Gutfeld R J, Dreyfus R W. A P L, 1989;54(13):1212