

文章编号: 1001-3806(2006)03-0265-03

脉冲激光沉积 Al 膜的沉积模式及沉积速率研究

王泽敏, 戴明, 曾晓雁

(华中科技大学 激光技术国家重点实验室, 武汉 430074)

摘要: 为了给脉冲激光沉积 (PLD) 法沉积大面积均匀薄膜的应用提供相关的理论依据, 以纯铝块作为靶材, 采用 PLD 法在同轴和旁轴两种模式下对比研究了 Al 薄膜的厚度均匀性。同时, 在旁轴的沉积模式下分别研究了基片温度、激光功率和重复频率对 Al 薄膜沉积速率的影响规律。实验结果表明, 采用 PLD 方法在旁轴的沉积模式下获得的 Al 薄膜的厚度更加均匀。随着基片温度的增加, 薄膜的沉积速率反而降低。升高激光功率, 薄膜的沉积速率也随之提高。而在激光重复频率的变化过程中, Al 薄膜的沉积速率有一最大值。

关键词: 薄膜; 脉冲激光沉积; 沉积模式; 厚度均匀性; 沉积速率

中图分类号: TB43 **文献标识码:** A

Study on deposition mode and rate in pulsed laser deposition of Al film

WANG Zhe-min, DAI Ming, ZENG Xiao-yan

(National Laboratory of Laser Technology, HUST, Wuhan 430074, China)

Abstract: Bulk aluminium material is chosen as targets to prepare pure Al film by the method of pulsed laser deposition (PLD). The thickness uniformity of Al film in coaxial and side-axial deposition modes is also studied comparatively. Besides, the effects of substrate temperature, laser power and repetition rate on deposition rate of Al film in side-axial deposition mode are investigated respectively. The results show that the thickness uniformity of the film gotten in side-axial deposition mode is better than that in coaxial deposition mode. The deposition rate of Al film decreases with the increase of the substrate temperature. However, the deposition rate of Al film increases with increasing laser power. Especially, there is a maximum deposition rate of Al film by varying the laser repetition rate. The above method and results can be used as a theoretical guidance for big area film deposition by PLD in application.

Key words: thin films; pulsed laser deposition; deposition mode; thickness uniformity; deposition rate

引 言

目前, 沉积薄膜的方法很多, 如热蒸发、溅射、MOCVD 和脉冲激光沉积 (pulsed laser deposition, PLD) 等都是比较常见的薄膜制备技术^[1]。其中, PLD 技术由于工艺简单、针对的靶材范围广泛、容易保持膜靶成分一致以及薄膜的质量很高而其倍受研究人员的重视^[2,3], 在纯金属、铁电体、半导体、金刚石或类金刚石以及各种有机材料薄膜的制备中有着不可替代的优点^[4~8]。在沉积设备上, PLD 法也与其它薄膜沉积方法不同, 其能量源 (激光束) 与沉积室 (真空设备) 是两个相对独立的组成部件, 适应性良好, 容易调节, 而且设备的维护和检修比较方便。另外, 激光束的作用范围小, 作用位置易于精确控制, 彻底避免了溅射中的靶材中毒和蒸发中的能量源污染以及由于坍塌材料而

引入杂质等问题。

由于激光束作用面积的限制, 靶材上有效蒸发区域局限在激光光斑尺度范围, 因此, 激光脉冲的瞬间冲击作用使等离子体中物质的飞行方向与分布有限; 同时, 在不同的空间方向上, 等离子体羽辉中粒子的速率也不尽相同, 故粒子的能量和数量的分布也不均匀, 使 PLD 法在沉积大面积均匀薄膜方面还存在着许多理论和技術上的困难^[9,10], 因此, 相关研究也一直是 PLD 法沉积薄膜的研究重点。作者采用脉冲激光烧蚀纯 Al 块状靶材, 对比研究了两种沉积模式下获得的 Al 薄膜的厚度均匀性, 并在此基础上研究了制备工艺参数对薄膜沉积速率的影响。

1 实验方法与设备

实验中采用自行设计的 PLD-IV 型脉冲激光真空溅射沉积系统, 设备所能达到的最大背底真空度约为 10^{-4} Pa, 实时加热和温控系统能够使基片在室温至 450 °C 之间变化。该系统的能量源采用 HCL-LSY50F 型 Q 开关脉冲激光器, 最大功率为 50W, 波长为

作者简介: 王泽敏 (1974-), 男, 博士, 讲师, 现主要从事纳米材料和纳米薄膜、激光加工技术及其工业应用方面的研究。

E-mail: zmwang@mail.hust.edu.cn

收稿日期: 2005-05-24; 收到修改稿日期: 2005-11-21

1064nm,脉冲宽度为 200ns,重复频率在 0.5kHz~20kHz之间连续可调。系统工作时,聚焦后的激光束(光斑直径为 0.2mm)经过窗口射入真空沉积系统内部烧蚀靶材,在一定的真空度下完成薄膜的制备。

由于 Al及其合金材料薄膜具有良好的导电性、优良的抗氧化以及耐腐蚀性能,在电子工业及相关行业中有广泛的应用前景,因而有关制备 Al薄膜的研究具有重要的意义。实验中,靶材选用纯度为 99.99%的块状 Al材,靶材随着基座以 22r/min的转速旋转;采用普通玻璃片作为薄膜的沉积基片,沉积薄膜前用丙酮、酒精和去离子水对基片进行了多次超声波清洗;沉积过程中,设备的真空度为 1.0mPa。对于获得的薄膜,采用 LP-4型高分辨率激光轮廓仪测量薄膜的厚度,其扫描距离范围为 0cm~1cm。

2 实验结果与讨论

2.1 沉积模式对薄膜厚度分布均匀性的影响

为了对比研究薄膜厚度的分布均匀性,作者根据现有实验设备的特点采用了两种沉积模式,分别定义为同轴和旁轴沉积模式,如图 1a和图 1b所示。图 1a

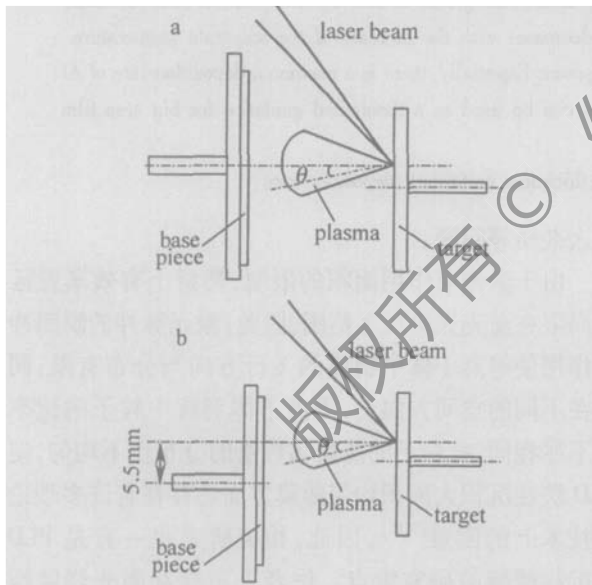


Fig 1 Two schematic drawings of deposition mode by pulsed laser deposition
a—coaxial deposition mode b—side-axial deposition mode

中,基片的旋转轴与激光作用处的法线(激光等离子体的轴线)同轴。在这种沉积模式下,激光等离子体在基片上的沉积位置成轴对称分布,若不考虑粒子在基片上的沉积几率以及自溅射等因素的影响,则所得薄膜厚度分布将直接反映激光烧蚀物质在空间的分布情况。而在图 1b中,基片的旋转轴与激光作用处的法线相距 5.5mm。在两种模式下,基片与靶材的间距均为 25mm,靶材转速为 22r/min,基片的转速为 11r/min。

根据目前的研究情况,均假设激光照射靶材后所产生的等离子体在空间的分布形式为轴对称,且满足

$\cos^n \theta$ 的分布 ($n \geq 1$)^[10],并采用如下公式对薄膜厚度进行模拟:

$$t(\theta) = t_0 \cos^{n+3} \theta \quad (1)$$

式中, t_0 为薄膜中心的 ($\theta = 0$)处的薄膜厚度, θ 的定义如图 1所示。

图 2和图 3分别为同轴和旁轴模式下薄膜厚度的实际测量图和模拟图。对比图 2a和图 3a可以看出,

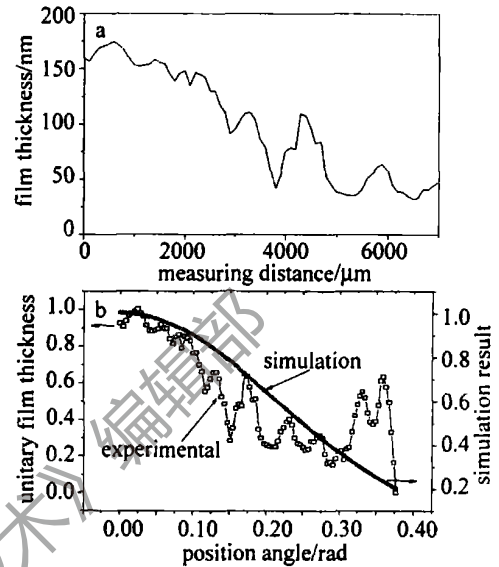


Fig 2 The experimental and simulation results of film thickness in coaxial mode
a—the measuring curve of film thickness b—the normal film thickness and simulation curve

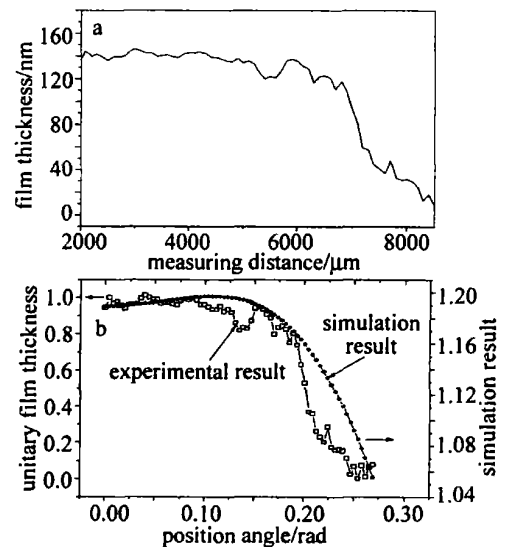


Fig 3 The experimental and simulation results of film thickness in side-axial mode
a—the measuring curve of film thickness b—the normal film thickness and simulation curve

基片等离子体的相对位置对所沉积的薄膜的厚度均匀性有很大的影响,当基片与等离子体不同轴时,所沉积的 Al薄膜的厚度均匀性得到了很大提高,能够在较大的面积上获得厚度分布均匀的薄膜。而从图 2b和图 3b可以看出,在两种沉积模式和归一处理后,薄膜的实际厚度变化规律与采用 $\cos^2 \theta$ 模拟计算得到的结果非常接近,薄膜的厚度分布符合 $\cos^2 \theta$ 分布的规律,

因此,激光照射靶材后所产生的等离子体在空间的分布形式符合 $\cos^2 \theta$ 分布。可见,采用合适的基片等离子体轴间距,同时辅助以合适的激光扫描方式,能够利用 PLD 法沉积出厚度均匀的大面积薄膜材料。

2.2 工艺参数对薄膜沉积速率的影响

由于沉积速率关系着 PLD 法制备薄膜的效率,因而,在保证薄膜厚度均匀的基础上研究工艺参数对薄膜沉积速率的影响规律具有重要的意义。在本试验条件下,采用了如图 1b 所示的旁轴沉积模式在不同工艺参数下沉积了纯铝薄膜,并系统研究了工艺参数对薄膜沉积速率的影响规律。

2.2.1 基片温度

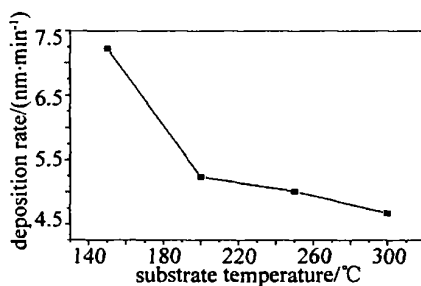


图 4 中给出了激光功率为 20W、重复频率为 1.15kHz 和沉积时间一定的条件下,纯铝薄膜的沉积速率随基片温度的变化曲线。从图中可以看出,基片温度对薄膜的沉积速率影响很大,随着基片温度的升高,薄膜的沉积速率不断下降,特别是在 150°C 至 200°C 之间沉积速率下降最为明显。这是因为在不同的基片温度下,薄膜的生长方式有所不同。随着基片温度的升高,薄膜在基片上的临界晶核尺寸变大,形核率降低;同时,由于粒子在基片上的沉积属于一个物理吸附过程,在较高的基片温度下,粒子的活性较强,导致吸附粒子从基片表面解吸附的几率增加,使薄膜的沉积速率下降。

2.2.2 激光功率

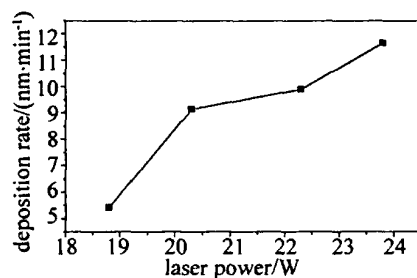


图 5 是在不加热基片和激光重复频率一定 (1.15kHz) 的条件下,纯 Al 薄膜的沉积速率随着激光输出功率的变化情况。从图 5 可知,随着激光功率的升高,薄膜的沉积速率随之提高。可见,高的激光功率有利于提高薄膜的沉积效率。当其它工艺参数一定时,提高激光输出功率将增加激光烧蚀靶材的深度,

增加靶材的材料溅射率,从而提高了薄膜的沉积速率。

2.2.3 激光重复频率 图 6 是在基片温度为室温、激光功率为 20W 和一定的沉积时间下,薄膜的沉积速率随着激光重复频率的变化规律。从图中可以看到,在

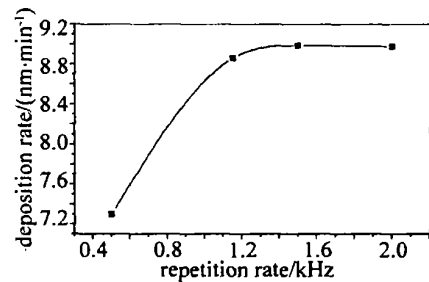


图 6 The effect of repetition rate on the deposition rate of Al film 激光重复频率小于 1.5kHz 时,Al 薄膜的沉积速率随着重复频率的增加而急剧提高;当重复频率达到 1.5kHz 时,沉积速率到达最大值;当激光重复频率在此基础上继续升高时,薄膜的沉积速率略有下降。这说明在相同的激光功率下,重复频率的变化对薄膜沉积速率的影响是一个矛盾的过程。一方面,由于重复频率的增加,单位时间内作用到靶材表面的脉冲数明显增加,导致沉积速率增加;另一方面,由于重复频率的增加,激光单脉冲能量将降低,其热作用深度随之减小,脱离靶材的物质将减少,从而降低薄膜的沉积速率。因此,当激光重复频率变化时,上述两方面因素的综合作用使薄膜沉积速率出现了图 6 所示的变化规律。

3 结论

与同轴模式相比,采用旁轴的沉积模式更有利于获得厚度均匀的纯 Al 薄膜。两种沉积模式下,薄膜的实际厚度变化规律与采用 $\cos^2 \theta$ 模拟计算得到的结果非常吻合。在旁轴模式下,随着基片温度的增加,薄膜的沉积速率反而降低。而 Al 薄膜的沉积速率则随着激光功率的升高而不断增加。在激光重复频率的变化过程中,当重复频率小于 1.5kHz 时,Al 薄膜的沉积速率随着重复频率的增加而急剧提高;当重复频率达到 1.5kHz 时,沉积速率达到最大值;当继续升高激光重复频率时,薄膜的沉积速率略有下降。

参考文献

- [1] CHEN Ch Zh, BAO Q H, YAO Sh Sh *et al* Pulsed laser deposition and its application [J]. Laser Technology, 2003, 27 (5): 443 ~ 446 (in Chinese).
- [2] SASAKI, TERAUCHI S, KOSHIZAKI N *et al* Preparation of nanoparticles by excimer laser ablation of calcium ion complex oxide [J]. Ceramics Processing, 1997, A43 (11): 2636.
- [3] LOWDES D H, GEOHEGAN D B, PURETZKY A A *et al* Synthesis of novel thin-film materials by pulsed laser deposition [J]. Science, 1996, 273 (5277): 898 ~ 903.

(下转第 310 页)

换系数。将(2)式和(8)式用于动态打孔程序,很好地消除了枕形和桶形失真现象^[3~5]。

实际生产中,激光功率 87W、2.5倍扩束、焦距 100mm 的聚焦镜,生产线速度 8m/min。

3 效果分析

激光制出的小孔一般为圆形。如果调整焦点的位置,就会出现如图 4a和图 4b所示的情况。图 4a为焦

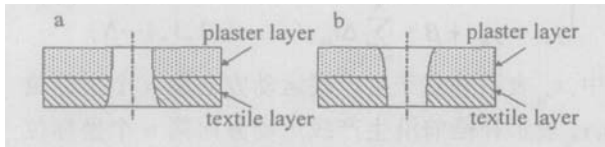


Fig 4 Performance sketch map

点在膏剂面以上的孔型,图 4b为焦点在膏剂面以下的孔型。孔型轴剖面为锥形,部分小孔略有一点椭圆形变,其原因主要是光斑内能量分布不均匀和存在一定的发散角。但由于激光制孔的孔小,微小的椭圆形变不会影响其外观效果和透气效果。从实际情况考虑,

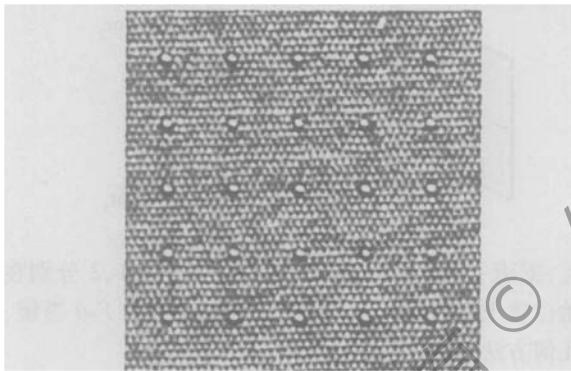


Fig 5 Final result

激光制孔时,药膏仍然成糨糊状,最好是采用负离焦,小孔形状如图 4b所示,激光切缝处形成凝聚层,使小孔不被堵塞。

图 5是在速度 10m/min 的情况下厚度为 0.5mm 的化纤织物上进行打孔的效果图。孔形无拉长现象,孔大小、疏密一致,行列均匀,在制孔位没有出现焦糊,达到了预期的效果。

4 结论

在理论分析的基础上,对膏药在线动态打孔方法和相应的传动系统进行了研究,研制成功该套系统,并实现了良好的动态打孔效果,打孔速度快,打孔图样调整灵活。该系统已经应用于 5条膏药生产线,并获发明专利一项,实用新型专利一项。

参考文献

- [1] LI J F, LIL, STOTT F H. Comparison of volumetric and surface heating sources in the modeling of laser melting of ceramic materials [J]. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2004, 47 (6~7): 1159~1174.
- [2] NG G K L, LIL. The effect of laser peak power and pulse width on the hole geometry repeatability in laser percussion drilling [J]. *Opt & Laser Technol*, 2001, 33 (6): 393~402.
- [3] WAN Zh, DU W X. Calibration of graphic distortion and compensation of exposure for dual galvanometer scanning [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2000, 4 (2): 115~118 (in Chinese).
- [4] GUAN Z Zh. *Handbook of laser processing* [M]. Beijing: China Metrology Publishing House, 1998. 58~90 (in Chinese).
- [5] WANG X D, ZHAO X M. The study on dynamic and high speed laser drilling system [J]. *Laser Technology*, 2003, 27 (6): 563~566 (in Chinese).

(上接第 267页)

- [4] HUSMANN A, WESNER D A, SCHMIDT J *et al* Pulsed laser deposition of crystalline PZT thin films [J]. *Surface and Coatings Technology*, 1997, 97 (1~3): 420~425.
- [5] COLLINS C B, DAVANLOO F, JUENGERMAN E M *et al* Laser plasma source of amorphous diamond [J]. *A P L*, 1989, 54 (3): 216~219.
- [6] PARK B H, KANG B S. Lanthanum-substituted bismuth titanate for use in non-volatile memories [J]. *Nature*, 1999, 401 (6754): 682~684.
- [7] DAMANT R, J MENEZ E, PONTAOWSKIE H *et al* Plasma dynamics inferred from optical emission spectra during diamond-like thin film pulsed laser deposition [J]. *Diamond and Related Materials*, 1999, 8 (7): 1277~1284.
- [8] YOSHIMOTO M, YOSHIDA K. Epitaxial diamond growth on sapphire in an oxidizing environment [J]. *Nature*, 1999, 399 (6734): 340~342.
- [9] AO Y H, HU Sh L, LONG H *et al* Study on pulsed laser deposition technology [J]. *Laser Technology*, 2003, 27 (5): 453~459 (in Chinese).
- [10] CHRISSEY D B, HUBLER G K. Pulsed laser deposition of thin films [M]. New York: Wiley, 1994. 199~227.