

文章编号: 1001-3806(2011)04-0535-04

沉积条件对氢化锂薄膜形貌和沉积速率的影响

雷洁红^{1,3}, 段涛², 闫正洲¹, 邢丕峰³

(1. 西华师范大学 物理与电子信息学院, 南充 637002; 2. 西南科技大学 核废物与环境安全国防重点学科实验室, 绵阳 621010; 3. 中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 绵阳 621900)

摘要: 为了研究沉积条件对氢化锂薄膜沉积速率和表面形貌的影响, 采用脉冲激光沉积方法在 Si(100) 基片上沉积了氢化锂薄膜。通过改变靶基距和氢压等手段来控制薄膜的沉积速率, 得到了氢压与沉积速率和薄膜表面质量的关系。结果表明, 随着氢压和靶基距的增加, 氢化锂薄膜的沉积速率逐渐下降; 适当增加氢压可以降低氢化锂薄膜的表面粗糙度。从薄膜生长机理出发, 探讨了表面粗糙度与氢压的关系, 发现理论与实验值的拟合结果非常接近。

关键词: 薄膜; 沉积条件; 沉积速率; 表面形貌; 脉冲激光沉积

中图分类号: O484.5 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-3806.2011.04.023

Effect of deposition condition on morphology and deposition velocity of LiH films

LEI Jie-hong^{1,3}, DUAN Tao², YAN Zheng-zhou¹, XING Pi-feng³

(1. Physics and Electronic Information Institute, West China Normal University, Nanchong 637002, China; 2. Key Laboratory for Radioactive Waste and Environmental Security, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 3. Research Center of Laser Fusion, Chinese Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract: In order to study effect of deposition conditions on morphology and deposition velocity of LiH films, LiH films were prepared on Si(100) substrate by means of pulsed laser deposition. The deposition velocity of LiH films were controlled by changing the substrate-target distance and hydrogen pressure. The relations among hydrogen pressure, deposition velocity and surface quality of the films were obtained. The results showed that the deposition velocity of LiH films decreased with hydrogen pressure and substrate-target distance increasing, moreover, the surface roughness can be reduced by increasing the hydrogen pressure to a certain degree. The relation between surface roughness and hydrogen pressure was discussed based on the growth mechanism of films. The theoretical values are in good agreement with experimental values.

Key words: thin films; deposition condition; deposition velocity; surface morphology; pulsed laser deposition

引言

惯性约束聚变是实现受控核聚变的一种有效的途径。惯性约束聚变的原理是利用功率巨大的激光照射到靶上, 将聚变燃料氘、氚向内压缩, 靶材料形成的等离子体由于自身惯性还来不及向四周分散就被加热到极高温并发生聚变反应, 从而获取聚变能^[1,4]。氘、氚作为惯性约束聚变靶丸燃料主要以气态和固态存在^[5]。惯性约束聚变中, 氘、氚燃料发生聚变反应要持续一定的时间, 消耗的氘需要进行补充。氘氚冰或

氘氚气体无法自增值, 氘和氚的补充主要依靠外界来源。目前氘的来源主要有两种, 一种是核反应堆生成氘, 另一种是从重水中提取氘。这两种方式均设备复杂、价格昂贵。如果增加氘氚冰层的厚度来增加燃料容量, 又会增加氘氚冰层的表面粗糙度从而影响点火。

作为一种聚变燃料, $\text{LiD}_x\text{T}_{1-x}$ 中的氘氚密度高, 能够储存较多的氘氚燃料; 而且同位素⁶Li 与中子反应生成的氘, 可以参与聚变反应或回收再利用。⁶Li 也可有效地利用中子, 并起到了慢化、屏蔽中子的作用^[6-7]。在点火靶中, 增加 1 层 $\text{LiD}_x\text{T}_{1-x}$ 薄膜涂层有望解决聚变反应自持和为了延长反应时间而增加氘氚冰层所带来的表面粗糙度增加的问题, 而且制备 $\text{LiD}_x\text{T}_{1-x}$ 薄膜的物理气相沉积技术易操作, 不涉及冷冻技术, 成本低。但是由于⁶Li 和 T 同属战略物资, 价格昂贵, 而 T 又属于放射性的有毒物质, 在实验制备和性质研究中不适于大规模应用。天然 Li 和 H, D 与⁶Li 和 T 的化

基金项目: 国家八六三高技术研究发展计划资助项目; 西华师范大学博士科研启动资金资助项目(10B014)

作者简介: 雷洁红(1980-), 女, 博士, 讲师, 主要从事纳米功能材料方面的研究。

E-mail: jiehonglei@126.com

收稿日期: 2010-09-13; 收到修改稿日期: 2010-11-22

学性质相同,物理性质相似,所以用氢化锂替代研究。因此,在惯性约束聚变的研究中,开展氢化锂薄膜的制备和研究有重要的理论和工程意义。

本实验中采用脉冲激光沉积方法制备了氢化锂薄膜,通过改变靶基距和反应气压等手段来控制薄膜的沉积速率,探讨影响薄膜沉积速率和表面粗糙度的因素。从生长机理出发,分析氢化锂薄膜表面形貌发生改变的原因,比较了不同工艺参量下,薄膜的表面形貌和沉积速率,为探索氢化锂薄膜的制备条件提供了基础的研究结论。

1 实验参量

实验的具体参量如表1所示。实验中,激发源为

Table 1 Preparation parameters of the experiment

sample	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄	A ₅	B ₁	B ₂	B ₃	B ₄
hydrogen pressure/Pa	0.1	1	5	10	15	10	10	10	10
distance between target and substrate/mm	55	55	55	55	55	35	45	55	65

KrF 准分子激光器,单脉冲峰值能量为 250mJ,脉冲宽度为 20ns,激光能量密度为 5J/cm²,重复频率为 2Hz。采用高纯压制的锂靶(纯度为 99.99%),本底真空约为 5 × 10⁻⁵Pa,基底温度为 25°。制备薄膜时,通入高纯氢气(纯度为 99.999%),氢气流量由质量流量计控制,氢气气压由真空计显示。基片选用单晶 Si(100),首先将基片放入到丙酮中进行超声波清洗,时间大约为 5min,然后放入到 15% HF 溶液中浸泡大约 3min,去掉 Si 基片上的氧化层,然后在洗净的基片上蒙上一层保鲜膜,将保鲜膜与基片之间的气泡赶尽,让它们充分接触。然后在贴有保鲜膜的硅基片中心切掉一部分保鲜膜,露出 Si 片待用。实验样品用扫描电镜测试薄膜的表面形貌,用台阶仪测试薄膜的厚度,薄膜沉积时间均为 2h。

2 实验结果

2.1 沉积条件对氢化锂薄膜沉积速率的影响

图1为样品 A₁ ~ A₅ 的沉积速率随氢气压变化的

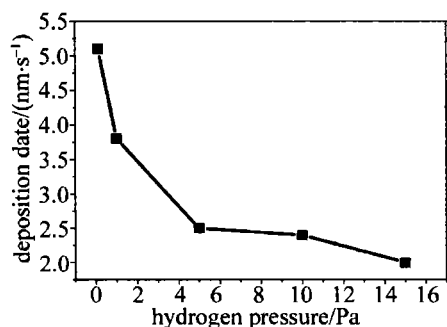


Fig. 1 Hydrogen pressure dependence on deposition velocity

曲线。由图可以发现,随着氢气压的增加(从 0.1Pa 到 15Pa),沉积速率逐渐下降。当氢气压 0.1Pa 时,沉积速率最大,为 5.1nm/s;气压从 0.1Pa 增大到 5Pa 的过程中,沉积速率下降较快,气压 5Pa 时,沉积速率变为 2.5nm/s,几乎下降了一半;此时气压进一步增加,沉积速率仍然减小,但变化的速度明显减慢,气压为 15Pa 时,沉积速率为 2nm/s。

薄膜样品 B₁ ~ B₄ 的沉积速率随靶基距变化的关系如图2所示。由图可知,靶基距发生变化时,薄膜的沉积速率发生变化,随着靶基距的增加(35mm ~ 65mm),薄膜的沉积速率减小。靶基距为 35mm 时,薄膜的沉积速率为 5nm/s,靶基距 65mm 时,沉积速率为 3.73nm/s,在整个变化区域中,沉积速率与靶基距的变化几乎呈线性。

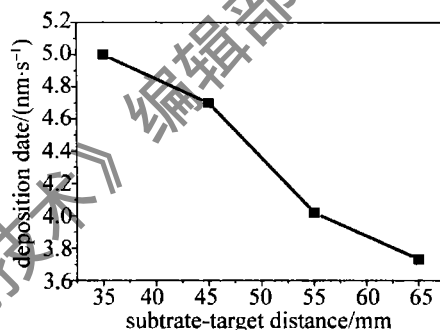


Fig. 2 Substrate-target distance dependence on deposition velocity

2.2 沉积条件对氢化锂薄膜表面形貌的影响

样品 A₁ ~ A₅ 的表面形貌由扫描电镜给出(如图3所示),表面粗糙度由台阶仪给出,具体数据见表2。

由图3和表2可知,氢气压从 0.1Pa 到 15Pa 范围

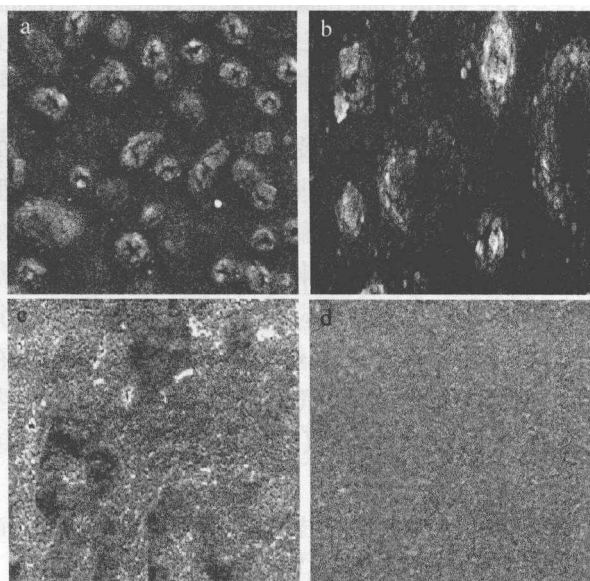


Fig. 3 SEM images of samples grown at hydrogen pressure
a—1Pa b—5Pa c—10Pa d—15Pa

Table 2 Surface roughness of A₁ ~ A₅

hydrogen pressure/Pa	0.1	1	5	10	15
root mean square/nm	32.5	22.3	10	7.9	5.7

内,薄膜表面相对粗糙,但随着气压的增加,薄膜表面渐渐变得相对光滑。在薄膜表面的大颗粒逐渐减少,最后变得相对平整光滑。

3 讨论与分析

3.1 沉积速率分析

许多研究发现,用脉冲激光沉积法沉积薄膜时,激光能量密度、靶基距和反应气压之间存在一定的关系^[8-10]:

$$\frac{E}{d^{5(n-1)}p^n} = \text{const} \quad (1)$$

式中, $n > 1$ 是一个与波前对称性相关的参量。由(1)式可以看出,当激光能量密度 E 和气体压力 p 一定时,等离子体的羽辉长度基本不变。当靶基距 d 小于羽辉长度 L 时,粒子的沉积速度较快;靶基距增大,沉积速率增加,当靶基距 d 大于羽辉长度 L 时,溅射粒子的沉积速率明显下降且到达基片表面的能量降低。实验中发现,随着靶基距的增加,沉积速率逐渐减小,这一现象与此结论正好符合。

此外,在实验中发现,氢气气压对薄膜的沉积速率和表面形貌都有不同程度的影响。这主要是因为氢气气压对等离子体羽辉有很大的影响。由于等离子体与氢气碰撞,使得随着氢气气压的增加,羽辉长度和宽度明显减小。在氢气气压较低时,羽辉较长较宽,靶基距比羽辉长度短,沉积速率较高,且此时到达基片表面的粒子能量较高,可能发生反溅射导致薄膜表面质量较差。在氢气气压较高时,羽辉长度较短较窄,靶基距比羽辉长度长,沉积速率较低。

3.2 表面分析

薄膜生长取决于基片表面的吸附原子扩散与聚集的竞争效应。针对不同气压条件下薄膜粗糙度的变化,作者做了一个简单的假设,建立了一个简单的扩散模型。

设扩散率为 f , 聚集率为 a , 假设扩散率与聚集率的关系为:

$$a = A + B/f \quad (2)$$

式中, A, B 为常数。原子的扩散率关键取决原子扩散系数 D 。扩散系数表达式为:

$$D = D_0 \exp[-(E_1 - E_2)/(kT)] \quad (3)$$

式中, D_0 是扩散常数, E_1 是粒子扩散需克服的势垒, k 是玻尔兹曼常数, T 是基底温度。则定义扩散率 f 与扩散系数 D 的关系为:

$$f \propto C \cdot D = CD_0 \exp[-(E_1 - E_2)/(kT)] \quad (4)$$

式中, C 为一常数。由(4)式可知, f 仅取决于原子自身的动能 E_2 。则(1)式可以写为:

$$a = A + \frac{B}{f} = A + \frac{B}{CD_0 \exp\left(-\frac{E_1 - E_2}{kT}\right)} = A + F \exp\left(\frac{-E_2}{kT}\right) \quad (5)$$

式中, $F = \frac{B \exp\left(\frac{E_1}{kT}\right)}{CD_0}$ 是一常数。

由参考文献[11]可知,氢气在脉冲激光沉积过程中主要起两个作用,一是作为反应气体参与薄膜的生长,二是作为缓冲气体控制等离子体的速度、提高薄膜的均一度。随着氢气气压的增加,等离子体的流速减小,激光与等离子体相互作用越小,最终到达靶表面的激光通量 ρ 越大。假设到达靶表面的激光通量 ρ 与反应气压成如下关系:

$$\rho = Jp \quad (6)$$

式中, J 为一正常数。

根据参考文献[12]和参考文献[13]可知,被激发的锂离子动能与激光通量成正比,故有:

$$E_2 = K\rho = KJp = Mp \quad (7)$$

式中, $M=KJ$ 为正常数。将(7)式代入(5)式中,得到:

$$a = A + F \exp\left(\frac{-Mp}{kT}\right) \quad (8)$$

薄膜表面的粗糙度正比于原子聚集率,则均方根粗糙度 R_a 与反应气压的关系可以定义为:

$$R_a = A + B \exp\left(\frac{-Mp}{kT}\right) \quad (9)$$

式中, A, B, M 均为正常数, p, k, T 分别为反应气压、玻尔兹曼常数和温度。

如图4所示,对实验结果进行拟合,可以得到较好的拟合结果。

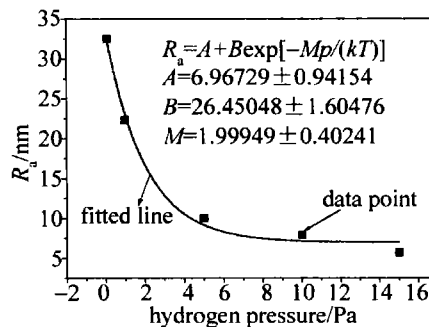


Fig. 4 Fitted line in using Eq. 9

从所建立的模型可以看出,薄膜表面的粗糙度取决于基片表面的吸附原子生长。当反应气体——氢气的压强很小时(0.1Pa),一方面等离子体的速度相对较大,激光与等离子体的相互作用较强,激发出来的锂离子能量较低;另一方面,氢气气压小,气体起到的缓冲作用很小,导致到达基片表面的粒子数较多且能量

较低,所以聚集效应加强,薄膜表面颗粒增加,粗糙度增大。随着氢气气压的增加,等离子体的速度减小,激光与等离子体的相互作用减弱,激发出来的锂离子能量增加,而且气体的缓冲作用增加,到达基片表面的粒子数减少,聚集效应减小且粒子有足够的能量扩散,使得薄膜表面逐渐光滑。

4 结论

脉冲激光沉积法制备氢化锂薄膜,沉积速率随靶基距和氢气气压的增加而减小。在激光能量一定时,靶基距和氢气气压变化会影响等离子体羽辉的长度,从而影响沉积速率。在脉冲激光沉积氢化锂薄膜的过程中,氢气主要起两个作用,一是作为反应气体参与薄膜的生长,二是作为缓冲气体控制等离子体的速度、提高薄膜的均一度。随着氢气气压的增加,氢化锂薄膜的表面粗糙度降低。

参考文献

- [1] ZHANG J, CHANG T Q. Fundamentals of the target physics for laser fusion[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2004:116-250 (in Chinese).
- [2] TAKABE H, NACATOMO H, SUNAHARA A, *et al.* Target design for ignition and high gain in direct drive ICF[J]. Fusion Engineering and Design, 1999, 44(1/4): 105-110.
- [3] LINDL J D, AMENDT P, RICHARD L, *et al.* The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the National Ignition Facility [J]. Physics of Plasmas, 2003, 11(2): 3933-4023.
- [4] LEI J H, DUAN H, XIN P F, *et al.* Design of soft X-ray multilayer for familiar spacing layer material[J]. Laser Technology, 2011, 35(3):415-417(in Chinese).
- [5] GIORLA J, BASTIAN J, BAYER C, *et al.* Target design for ignition experiments on the laser mégajoule facility[J]. Plasma Physics and Controlled Fusion, 2006, 48(12): B75-B82.
- [6] CARSTENS D H W, FARNUM E H, FRIES R J, *et al.* Fabrication of $\text{LiD}_{0.5}\text{T}_{0.5}$ Microspheres for use as laser fusion targets[J]. Journal of Nuclear Material, 1975, 57(1):1-10.
- [7] SCHULTZ K R, KAAE J L, MILLER W J, *et al.* Status of inertial fusion target fabrication in the USA[J]. Fusion Engineering and Design, 1999, 44(1/4): 441-448.
- [8] WANG X Ch. Preparation and characterization of LiNbO_3 thin films on silicon substrate by pulsed laser deposition[D]. Hangzhou: Materials Physics & Chemistry of Zhejiang University, 2005:45-46 (in Chinese).
- [9] WU L, SOLOVYOV S V, WIESMANH J N, *et al.* Twin boundaries and critical current densities of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ thick films fabricated by the BaF_2 process[J]. Superconductor Science and Technology, 2003, 16(10): 1127-1133.
- [10] NAKATA Y, GUNJI S, OKADA T, *et al.* Fabrication of LiNbO_3 thin films by pulsed laser deposition and investigation of nonlinear properties[J]. Applied Physics, 2004, A79(4/6): 1279-1282.
- [11] LIU D Sh, ZHONG Sh Y, DU Y L, *et al.* Study of LiCoO_2 thin film grown under different oxygen pressure by pulsed laser deposition[J]. Journal of Synthetic Crystals, 2008, 37(2): 500-503 (in Chinese).
- [12] VOEVODIN A A, DONLEY M S. Preparation of amorphous diamond-like carbon by pulsed laser deposition: a critical review[J]. Surface and Coatings Technology, 1996, 82(3):199-213.
- [13] BONELLI M, FERRARI A C, FIORABANTI A, *et al.* Structure and mechanical properties of low stress tetrahedral amorphous carbon films prepared by pulsed laser deposition[J]. The European Physical Journal, 2002, B25(2):269-280.

(上接第 534 页)

- optical burst switching with limited fiber delay lines[J]. Acta Photonica Sinica, 2002, 31(10):1190-1194 (in Chinese).
- [6] HERNANDEZ J A, ARACIL J, PEDRO L D, *et al.* Analysis of blocking probability of data bursts with continuous-time variable offsets in single-wavelength OBS switches[J]. Journal of Lightwave Technology, 2008, 26(12):1559-1568.
- [7] KLINKOWSKI M, CAREGLIO D, SOLE-PARETA J, *et al.* Performance overview of the offset time emulated OBS network architecture [J]. Journal of Lightwave Technology, 2009, 27(14):2751-2764.
- [8] LIU Y, QIU Q. Research of FDL structure in OBS core node[J]. Laser Technology, 2005, 29(6):572-578 (in Chinese).
- [9] BI F J, ZHANG M, YE P D. A novel prioritized scheme for contention resolution in optical burst switched networks[J]. Acta Photonica Sinica, 2005, 34(6):900-904 (in Chinese).
- [10] HOU R, SUN J Q, DING P F. Study on a priority based contention resolution for optical burst switching networks[J]. Journal of Electronics & Information Technology, 2006, 28(4): 747-751 (in Chinese).