

影响激光诱导等离子体喷射速度的因素*

安承武 王又青 宋文栋

(华中理工大学激光技术国家重点实验室, 武汉 430074)

M. Mertin D. A. Wesner E. W. Kreutz

(Lehrstuhl fuer Lasertechnik, RWTH Aachen, D-52074 Aachen)

提要 利用光学多通道分析仪(OMA II)分析了脉冲激光沉积 BaTiO₃ 薄膜过程中激光诱导等离子体束的飞行时间谱。根据不同实验参数与条件下等离子体束的飞行时间谱的特征,讨论了条件对等离子体喷射速度的影响。结果表明,在脉冲激光沉积薄膜的情况下,喷射等离子体的飞行速度主要依赖于作用于靶面的激光能量密度。

关键词 激光沉积,等离子体,飞行速度,飞行时间谱

1 引言

脉冲激光沉积薄膜的技术在制备微电子器件用功能薄膜领域已受到极大的重视^[1,2]。因此,探索适宜的制膜条件对于获得优质的薄膜是极其重要的。而在激光沉积过程中,实验条件对激光轰击靶材形成的喷射粒子束(即激光诱导等离子体)的喷射行为具有很大的影响,因此,可以通过研究喷射等离子体的特性,以掌握激光沉积薄膜的优化条件。

激光诱导等离子体的粒子喷射速度表征了粒子所具有的动能,喷射粒子的能量对沉积薄膜的性能具有很大的影响。高能量粒子的沉积不但有利于生长成致密的优质薄膜,而且还能够降低所需的基片加热温度,这也是脉冲激光沉积的一个特点。因此,认识和掌握影响喷射粒子速度的条件因素,无疑是主动把握激光沉积薄膜要领所极感兴趣的内容。由于强脉冲激光与靶材相互作用,在靶面法线方向上形成的喷射等离子体束在飞行过程中伴随着强烈的辐射,从而提供了光学诊断与分析的实验基础^[3,4]。光学手段分析飞行粒子速度的方法通常是研究粒子的飞行时间(TOF)谱^[5,6],所以,本文利用光学多通道分析仪(OMA II),研究和分析了不同条件下激光诱导 BaTiO₃ 等离子体的飞行时间谱,根据飞行时间谱的特征,讨论了影响喷射粒子束飞行速度的因素。

2 实验方法

实验研究是在激光沉积薄膜的系统上实时进行的。所用激光器为 Lumonics 600 型准分子

* 国家自然科学基金资助课题。

激光器,其输出的激光波长为 248 nm,脉冲宽度为 20 ns,激光束经准直后聚焦,以 45°角入射到靶面,光斑尺寸约为 3 mm²;靶材为烧结的 BaTiO₃;真空系统的背景真空度可到 10⁻⁵ Pa。进行飞行时间光谱研究的实验装置如图 1 所示,强激光束入射靶面剥离出一束粒子形成等离子体喷射,等离子体的辐射被透镜成像到真空室外经光纤传送到 OMA 探头中。实验所用的 OMA III 光学多通道分析仪配备有快速快门,最短开关时间为 20 ns,通过开关时间的设置,系统就具备了时间分辨采集信号的功能。实验中每个时间点采集信号的时间长度设定为 20 ns,即 OMA III 的快门打开 20 ns 后就立即关闭;每个时间点的信号取自 100 个等离子体束脉冲在该时刻发射的确定谱线;后一个时间点比前一个时间点的延时(即时间差)也设定为 20 ns;通过等离子体像平面上光阑的限制,使采集的信号来自于等离子体束在飞行过程中其上离靶面确定距离的一点。这样所采集到的各个时刻的信号,就是等离子体束在飞经监测点时束包体上各个位置所发射的谱线,因而所测试的不同时刻的谱线发射强度就描绘了所对应粒子束的飞行时间谱。将在离靶面不同距离的两点测得的飞行时间谱进行比较,就可求得该粒子束飞经这段距离的时间,进而求出该粒子束的空间飞行速度。

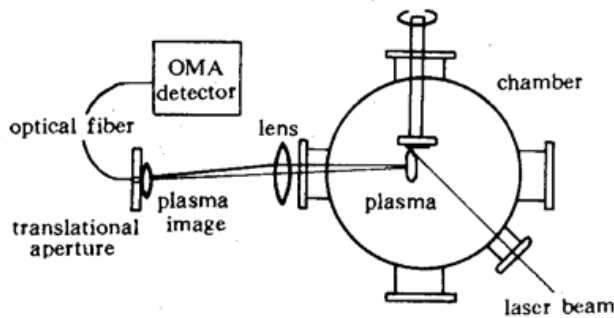


Fig. 1 The schematic of the experimental apparatus

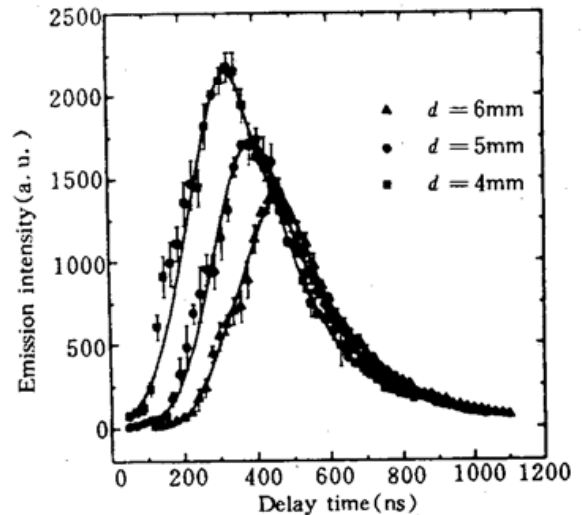


Fig. 2 The time-of-flight spectra of Ba I

图 2 所示为激光能量密度 1.8 J/cm²,氧气分压 10 Pa 时,在离靶面分别为 4 mm, 5mm 和 6 mm 处所测得的钡离子(Ba I)455.4 nm 谱线的飞行时间谱,根据两测点的间距和飞行时间谱上所示的时间差,估算出该处钡离子束的飞行速度约为 1.6×10^4 m/s。

3 实验结果与讨论

在激光沉积过程中,喷射粒子束的能量主要来自于激光能量,在氧气放电辅助的场合,粒子束的能量也会受到外电场的影响,另外,粒子束在飞行途中与缓冲气体的碰撞也会发生能量交换。所以影响粒子束飞行速度的因素可能是激光能量密度、辅助放电的电场和缓冲气体的分压。它们各自对等离子体飞行速度的影响程度,将由下列的结果给出。

图 3 是在氧气分压为 10 Pa 时,激光能量密度分别为 1.2, 1.5, 1.8, 2.2 和 2.4 J/cm² 的条件下,离靶面 4 mm 处测得的钡离子飞行时间谱,结果表明,随着激光能量密度的增加,粒子束飞行到测试点所需的时间明显缩短,这就是图 3 中显示出的飞行时间曲线左移的现象,即粒

子束的飞行速度明显加快。这一结果说明，当激光剥离靶材时，超过阈值的激光能量并不是全部用于产生喷射粒子，而是有相当一部分激光能量转换成了喷射粒子的功能，使粒子喷射速度随激光能量的增加而加快。这一结果也是对文献[7]的理论模型在实验上的支持。

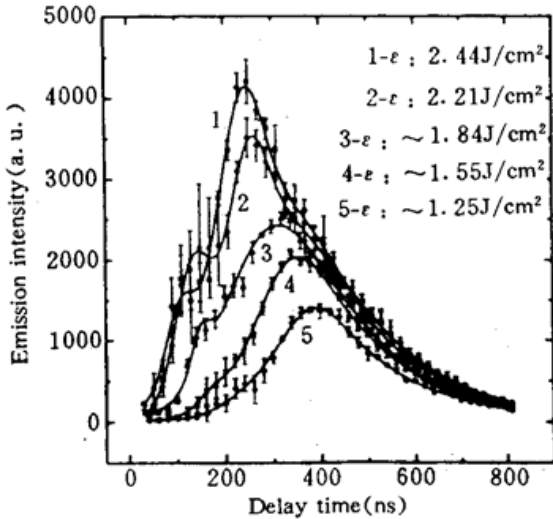


Fig. 3 The laser fluence dependence of the time-of-flight spectra of Ba I

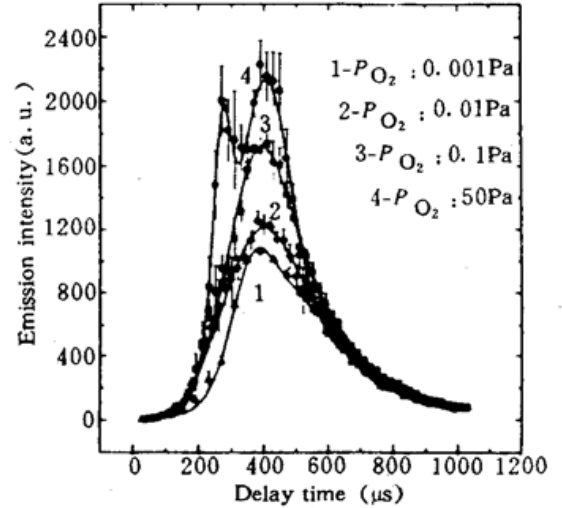


Fig. 4 The buffer oxygen pressure P dependence of the time-of-flight spectra of Ba I

图 4 所示是在激光能量密度为 1.8 J/cm^2 ，氧气分压分别为 $0.1, 1.0, 10$ 和 50 Pa 的条件下，离靶面 5 mm 处测得的钡离子飞行时间谱。可以看出，在不同的氧气分压条件下，粒子束飞行到测试点所需时间也有所差别，也就是说，缓冲气体压力对喷射等离子体的飞行速度具有一定的影响。实际上，当缓冲气体分压增加时，由于等离子体在飞行过程中与缓冲气体分子碰撞的几率增加，从而增加了飞行的阻力而导致速度下降。然而，一定分压的缓冲气体是激光沉积必不可少的条件，而且从图 4 可知，当缓冲气体压力低于 1 Pa 时，粒子的飞行速度受气压的影响已是很小，所以，利用真空条件提高粒子飞行速度不会有明显效果。

图 5 是在氧气放电辅助激光沉积的情况下，氧气分压为 10 Pa ，激光能量密度为 1.8 J/cm^2 ，放电直流电压分别为 $0, 350$ 和 625 V 的条件下测得的钡离子飞行时间谱。结果表明，在不同的氧气放电电压时，粒子束飞行到测试点所需的时间几乎没有变化，这就是说，辅助放电的电场对喷射等离子体的飞行速度没有什么影响。而且离子谱线强度也没有什么大的变化，这表明放电也没有导致金属离子浓度的明显增加。那么，文献[8]报道的在激光沉积高温超导薄膜时加入氧气放电辅助，基片加热温度可以大为降低的结果，可以认为其原因主要是由于激活的氧气使薄膜中的氧缺位减少，而不是增加了等离子体的飞行速度。

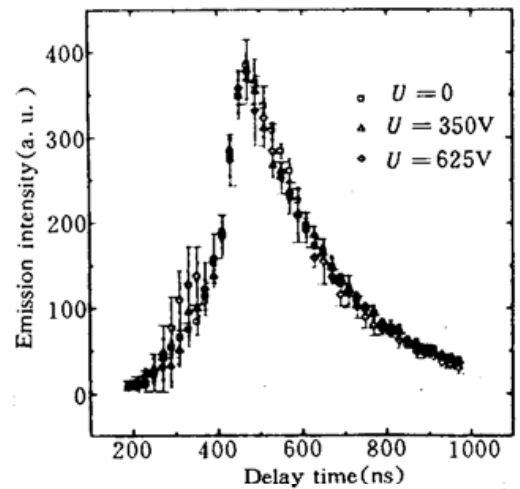


Fig. 5 The influence of the stationary electric field on the time-of-flight spectra of Ba I

根据以上研究结果可知,在脉冲激光沉积过程中,由于一定分压的缓冲气体是沉积多元材料薄膜所不可缺少的条件,所以,有效地提高喷射粒子束的飞行速度的措施将主要是增加脉冲激光的能量密度。

参 考 文 献

- 1 K. L. Saenger. Pulsed laser deposition part I: A review of process characteristics and capabilities. *Proc. of Advanced Materials*, 1993, 2(1): 1~24
- 2 M. Mertin, D. Offenber, C. W. An *et al.*. Pulsed laser deposition and patterning of electroceramic thin films. Proceedings of the 4th International Conference on Electronic Ceramics and Applications, 1994, Vol. I: 1361~1364
- 3 T. J. Geyer, W. A. Weimer. Spectral characteristics of plasma emission during ArF excimer laser ablation of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, 54(5): 469~471
- 4 Q. Y. Ying, D. T. Shaw, H. S. Kwok. Spectroscopic study of plasma-assisted laser deposition of Y-Ba-Cu-O. *Appl. Phys. Lett.*, 1988, 53(18): 1762~1764
- 5 范永昌, 安承武, 宁波等. 激光沉积超导薄膜过程中出射粒子速度的飞行时间谱分析. *光学学报*, 1991, 11(7): 598~601
- 6 F. Kokai, M. Taniwaki, Y. Koga *et al.*. Laser ionization time-of-flight mass spectrometric study on laser ablation of a graphite-like material of $(\text{BC}_2\text{N})_x$ composition. *J. Appl. Phys.*, 1995, 77(5): 2220~2222
- 7 An Chengwu, Lu Dongsheng, Fan Yongchang *et al.*. Discussion on particle formation and ejection of laser ablation for deposition superconducting thin films. *Progress in Natural Science*, 1993, 3(5): 432~439
- 8 S. Witanachchi, H. S. Kwok, X. W. Wang *et al.*. Deposition of superconducting Y-Ba-Cu-O films at 400 °C without postannealing. *Appl. Phys. Lett.*, 1988, 53(3): 234~236

Influence on the Flight Velocity of Laser Induced Plasma from BaTiO_3

An Chengwu Wang Youqing Song Wendong

(National Laboratory of Laser Technology; Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074)

M. Mertin D. A. Wesner E. W. Kreutz

(Lehrstuhl fuer Lasertechnik, RWTH Aachen, D-52074 Aachen)

Abstract The time-of-flight spectra of laser induced plasma from BaTiO_3 during pulsed laser deposition were studied with an optical multichannel analyzer (OMA III). The influence of the experimental conditions on the flight velocity of the ejected plasma was discussed based on the feature of their time-of-flight spectra. And it is concluded that the flight speed of the plasma depends mainly on the laser fluence incident upon the ablation target surface in the pulsed laser deposition process.

Key words laser deposition, plasma, flight velocity, time-of-flight spectra