文章编号: 0258-7025(2002)Supplement-0509-03

# 激光复合扫描剥离法制备大面积薄膜

胡少六 敖育红 王又青 龙 华 李 波 江 超 (华中科技大学激光技术国家重点实验室,武汉 430074)

提要 提出了一种新的激光扫描制备大面积均匀薄膜的方法:采用光学变换让脉冲激光按设定的像月球绕太阳运动一样的轨迹旋转,复合剥离靶材制备薄膜。提出了淀积膜厚分布的理论模型,计算了有关参量对膜厚分布的影响,并与实验结果进行了比较分析。这对改善实验条件,获得最佳大面积均匀薄膜具有直接的指导意义。 关键词 大面积均匀薄膜,扫描激光淀积,光学变换传输 中图分类号 TN249 文献标识码 A

## Large Area Thin Film Preparation by a Hybrid Scanning Laser Ablation

HU Shao-liu AO Yu-hong WANG You-qing LONG Hua LI Bo JIANG Chao (State Key Laboratory of Laser technology, Huazhong University of Science & Technology, WuHan 430074)

**Abstract** An improved approach of large area thin film deposition by a hybrid scanning laser ablation is proposed, in which the pulsed laser radiates a target along a specially designed track just like moon circling round sun. The calculation results show that the thickness distribution of films is more homogeneous than that with the simple circle scanning ablation, and an optimum dependence of film thickness homogeneity on such parameters as scanning track , and scanning speed etc. is presented. The tentative experimental study indicates the effectiveness of this method. **Key words** large area thin film, scanning laser deposition, optics switching transfer

1 引 言

制得大面积均匀薄膜一直是微电子器件等进一 步发展的要求。激光作为一种高功率密度能源而被 应用于淀积薄膜。脉冲激光淀积薄膜技术可以分为 三个过程:激光与固体靶作用生成等离子体过程;等 离子体的高速膨胀过程;等离子体在基片上的沉积 过程。该技术从原理或实验上讲几乎是所有薄膜生 长技术中最简单的,因而被广泛应用于进行新型薄 膜材料的研究。但是激光束与固体的相互作用却是 个极其复杂的物理现象。目前我们要探索的是如何 制得均匀性好且有使用价值的大面积均匀薄膜。

## 2 激光扫描淀积原理

激光淀积薄膜的基本原理如图 1 所示。实验研 究得出激光剥离等离子体密度的空间分布可由

$$F(\theta) = \frac{n+1}{2\pi} \cos^n \theta$$

\*国家自然科学基金(69401003、59602004)资助课题。

很好地描述<sup>[1]</sup>。其中 θ 是等离子体喷射方向与靶面 法线方向的夹角, n 是余弦分布指数, 它与激光能量 密度和背景气压等有关。激光扫描淀积薄膜厚度的 分布与单脉冲激光淀积的膜厚分布呈复杂的积分关 系。正是这种关系才有可能使淀积的薄膜厚度分布 趋于均匀。但简单激光圆扫描沉积法对沉积 \$ 30 mm 以上的大面积均匀薄膜存在不足。因此科学工作者 一直在探索更好的方法。



图 1 激光扫描淀积系统原理图 Fig.1 Scheme of scanning laser deposition 为此,我们设计了一套光学变换传输系统,它的 中

A29 卷

作用是使激光束经过该系统后可按类似月球绕太阳 运动的轨迹旋转,再将旋转激光束射入真空系统中 扫描剥离靶材来淀积厚度均匀的大面积薄膜。其光 路如图 2 所示,准分子激光器发射一束平行光,经矩 形光阑后照射到旋转的透镜上。假设在某一时刻, 透镜中心移到  $C_1$ 点,主光轴为  $C_1d_1,d_1$ 为焦点,则 入射光束经透镜后会聚于  $d_1$ 点。另一时刻,由于透 镜的旋转作用,透镜中心移到  $C_2$ 点,主光轴为  $C_2d_2,d_2$ 为焦点,则入射光束经透镜后会聚于  $d_2$ 点。这样,激光束会聚点随着透镜的转动在焦平面 上作同样轨迹的扫描运动。





# 3 激光复合扫描剥离淀积大面积薄膜 系统及膜厚分布均匀性的计算

采用图 2 的光路,先来分析一下其激光剥离点 的运行轨迹。为简单起见,选用如图 3 所示极坐标 系统,  $P(\rho, \theta)$  是激光在靶材上的剥离点,在X'SY'坐标内,绕着中心在  $S(R_1, \varphi)$  的圆转动,转动半径 为  $R_2$ ,角速度为  $\omega_2$ ,而在 XOY 坐标内, $S(R_1, \varphi)$ 又绕着中心在 O 的圆转动,转动半径为  $R_1$ ,角速度 为  $\omega_1$ 。剥离点 P 的转动轨迹方程为





 $\begin{cases} \rho \cos\theta = R_1 \cos\varphi + R_2 \cos\beta \\ \rho \sin\theta = R_1 \sin\varphi + R_2 \sin\beta \end{cases}$ (1)

假定  $\varphi = \varphi_0 + \omega_1 t, \quad \beta = \beta_0 + \omega_2 t,$  $\omega = \omega_1 - \omega_2, \quad \alpha_0 = \varphi_0 - \beta_0,$ 

(1)式可变为

 $\rho^{2} = R_{1}^{2} + R_{2}^{2} + 2R_{1}R_{2}\cos(\omega t + \alpha_{0})$ (2) 由在 OQ 上的投影可得

 $\theta = \varphi - \arctan \frac{R_2 \sin(\varphi - \beta)}{R_1 + R_2 \cos(\varphi - \beta)} - m\pi$ (3)

其中 m 是任意整数。当  $\varphi$  给定时, $\theta$  有一变化范围。 通过调节  $R_1, R_2$  和  $\omega_1, \omega_2$  可得到激光束扫描一周 时等离子体羽所能覆盖最佳范围。



图 4 激光复合扫描剥离示意图 Fig. 4 Geometric diagram of hybrid scanning laser ablation

另外,由于激光剥离出来的等离子体羽一般是 沿着靶材表面法线以发散角 δ(与靶材表面法线的 夹角)飞离靶材表面的(见图 4),等离子体羽的归一 化空间分布为<sup>[2]</sup>

$$Z(\delta) = \frac{(n+1)}{2\pi} \cos^n(\delta)$$
(4)

其中 n 为分布指数,由实验确定,一般为 n = 2.78 ~ 7.63。为使分析简化,在激光扫描靶材时,忽略粒 子沉积到基片上生长成膜过程中的迁移运动,也不 计后来连续射到基片上的粒子对已沉积到基片上粒 子的作用而产生的再蒸发效应。那么,激光束在每单 位长度 Δ*l* 上剥离所产生的粒子对基片 N 处沉积的 膜厚的贡献为

$$\Delta D(r,\delta) = \frac{A(n+1)\cos^{n}(\delta)}{H^{2}}\Delta l \qquad (5)$$

其中,A 是一个对膜厚相对分布没有影响的常数, H是激光在靶材表面上的剥离点P与基片上点N间 距离。于是,激光扫描一周时总的膜厚分布可通过沿 整个剥离轨迹积分得到(见图 4)

#### 胡少六等: 激光复合扫描剥离法制备大面积薄膜

其中,

$$\cos^2 \delta = \frac{h^2}{H^2} = \frac{h^2}{h^2 + a^2}$$
(7)

h 是靶与基片间的垂直距离, a 是等离子分布体羽的半径。进行积分,可以看出:膜厚与激光剥离轨迹 (或激光扫描半径  $R_1$ 和  $R_2$ ),以及扫描速度( $\omega_1$ ,  $\omega_2$ )等参数有关。表 1 列出了膜厚分布与薄膜半径 的关系  $D(r) \sim R_2$ 。结果表明:当选定  $R_1 = 35$  mm 时,  $R_2$ 的最佳值约为 18 mm。此时膜厚均匀度在 0.95 以上的薄膜半径约为 30 mm。表 2 表示了膜厚 分布与半径  $R_1$  的关系  $D(r) ~ R_1$ ,这里  $R_{2max}$  指半 径  $R_1$  变化时膜厚均匀性满足要求的  $R_2$  的最佳值。 当  $R_1 = 55$  mm,  $R_2 = 36.9$  mm 时,最大均匀区域 半径为  $r_{max} = 38$  mm。扫描速度对膜厚均匀性有着 直接的影响(见表 3)。当给定 n,h 和 $\omega_1$  时,最大均 匀半径为  $r_{max} = 76$  mm。但当  $\omega_2$  进一步增加时,薄 膜均匀半径反而变小。

当综合考虑有关因数的影响后,可得到以下最 佳参数配置:  $h = 40 \text{ mm}, n = 4, R_1 = 50 \text{ mm}, R_2 = 38.8 \text{ mm}, \omega_1 = 40 \text{ rad/s}, \omega_2 = 33 \text{ rad/s}。此时膜厚分$ 布在表 4 中列出,最大均匀半径约为 77 mm。

衣 1	DITITH	$K_2$ 的大东( $K_1$ -	$-35 \text{ mm}/(\omega_1)$	$-40, \omega$	$n_2 - 14, n$	-4, n - 40  mm)	

$R_2/\mathrm{mm}$	9.5	12.5	15.5	17.5	18	18.5	>18.5
D(r=0)	0.83	0.88	0.93	0.96	0.97	0.97	
$r \mid_D / \mathrm{mm}$	26	26	22	20	20	18	Vigiti-
r   <sub>D&gt;0.95</sub> /mm	>30	>30	>30	30	30	30	< 30

Table 1	<b>Relation</b> be	tween $D(r)$	and $R_2(R_1)$	$= 35 \text{ mm})(\omega_1$	$=40, \omega_2 =$	14, n = 4, h	a = 40  mm
---------	--------------------	--------------	----------------	-----------------------------	-------------------	--------------	------------

表 2	$D(r)$ 和 $R_1$	的关系( $\omega_1 = 4$ )	$0, \omega_2 = 14, n =$	4, h = 40  mm
-----	----------------	-----------------------	-------------------------	---------------

Table 2 Relation between $D(r)$ and $R_1(\omega_1 = 40, \omega_2 = 14, n = 4, n$	t = 40  mm	1
--	------------	---

$R_1/\text{mm}$	35	40	50	55	65	75	100
$R_{2max}/mm$	17.5	22.5	32.2	36.9	46.3	56.1	80.4
$R_{2\max}/R_1$	0.5	0.563	0.644	0.671	0.712	0.748	0.804
-   <sub>D&gt;0.95</sub> /mm	30	36	38	38	36	35	35

表 3 扫描速度和厚度的关系 $(n = 4, h = 40 \text{ mm}, \omega_1 = 40)$ 

### Table 3 Relation between scanning speeds and thickness of films ( $n = 4, h = 40 \text{ mm}, \omega_1 = 40$ )

$\omega_2$	11	13	17	19	21	23	26	29	31	33	34	39
$\omega_2/\omega_1$	0.275	0.325	0.425	0.475	0.525	0.575	0.650	0.725	0.775	0.825	0.850	0.975
$r _{D>0.95}/\text{mm}$	36	38	40	42	43	46	56	66	70	76	↓	¥

表 4 膜的厚度分布

Table 4 Thickness distribution of films

r / mm	0	10	20	40	50	60	66	70	77
D(r)	0.97	0.97	0.96	0.95	0.97	0.99	1	0.99	0.95

我们采用该方法进行了大面积高温超导薄膜淀 积的实验研究,在半径 25 mm 的 LaAlO<sub>3</sub>(100)基片 上得到的膜厚变化率小于 1.2%,这一结果明显优 于简单圆形激光扫描时的实验结果。另外,实验结 果往往略优于理论计算结果。这可能是由于基片上 的粒子扩散运动和等离子体羽轰击基片表面而引起 的再蒸发所致。

值得指出的是,激光复合扫描沉积薄膜技术同 样也可用于其他大面积薄膜如铁电薄膜、类金刚石 薄膜等的制备,结构简单,控制方便,因此具有较大 的实用价值。

### 参考文献

 Song Wendong. Doctoral dissertation. Huazhong Univ. of Science & Technology, 1993

2 An Chengwu, Song Wendong. Theoretical analysis of HTSC filmsover large area by laser scanning ablation. Laser Technology, 1995, 19(5):293~295