

文章编号: 0258-7025(2004)Supplement-0516-03

# 对激光烧蚀沉积 Ag 薄膜生长率和环境气压关系的理论解析

王英龙, 周 阳, 傅广生, 彭英才, 褚立志, 张荣梅  
(河北大学物理科学与技术学院, 河北 保定 071002)

**摘要** 为了对激光烧蚀沉积 Ag 薄膜生长率和环境气压关系进行定量解释, 考虑烧蚀产物在惰性气体环境中的动力学过程以及薄膜生长的沉积和二次溅射过程, 并假定二次溅射几率正比于入射粒子的动能, 建立了激光烧蚀沉积纳米薄膜生长的动力学模型。定量地解释了 T. Scharf 等人在惰性气体 He, Ne, Ar, Xe 环境下烧蚀沉积 Ag 膜的实验结果, 所出现偏差乃计及大颗粒所致。

**关键词** 薄膜物理学; Ag 薄膜沉积; 脉冲激光烧蚀

中图分类号 O484.1

文献标识码 A

## On Growth Rate of the Ag Thin Film Versus Ambient Pressure in Pulse Laser Ablation

WANG Ying-long, ZHOU Yang, FU Guang-sheng, PENG Ying-cai, CHU Li-zhi, ZHANG Rong-mei

(Department of Physics, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, China)

**Abstract** In order to explain quantitatively the relation between the growth rate of Ag thin film and ambient gas pressure in the pulsed laser ablation, considering the dynamic process of the ablated particles in inert ambient and the deposition and resputtering of thin films, supposing the probability of resputtering is proportional to kinetic energy of the ablated particles, the dynamic model of growing film is establish. The experiment result of T.Scharf et al. is explained quantitatively by considering the big grains.

**Key words** thin film physics; Ag thin film deposition; pulsed laser ablation

T. Scharf 等<sup>[1]</sup>采用 KrF 准分子激光器, 分别在 He, Ne, Ar, Xe 环境下烧蚀 Ag 靶, 研究了薄膜生长率与环境气压的关系。该工作是采用微量天平对膜厚进行测量的, 但其理论解释仅为定性讨论。

我们采用流体方程, 考虑薄膜生长的沉积和二次溅射过程, 建立了激光烧蚀沉积薄膜生长的动力学模型。应用这一模型, 定量地解释了 T.Scharf 等人的实验结果。

### 1 理论模型

如图 1 所示, 脉冲激光烧蚀 Ag 靶, 产生大量 Ag 粒子产物, 与一定气压下的环境气体碰撞, 到达衬底, 与衬底相互作用, 在衬底上形成 Ag 膜。到达衬底的粒子参与两种相互竞争的过程, 沉积和二次溅射, 分别使衬底薄膜厚度增加和减少。形成膜的粒子数乃为到达衬底的粒子数和经二次溅射脱离衬

底的粒子数之差。

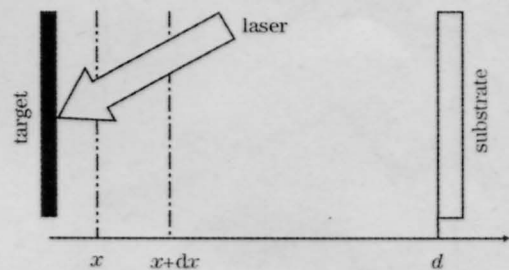


图 1 激光烧蚀沉积 Ag 膜装置的示意图

Fig.1 Schematic of laser ablation deposition

假定位置  $x$  处的粒子数为  $N$ , 经距离微元  $dx$  碰出沉积通道的粒子数与  $N$  以及碰撞次数成正比, 即

$$dN = -\beta N(dx/\lambda) \quad (1)$$

其中  $\beta$  为比例系数, 从单次碰撞效果上看,  $\beta$  应正比于环境气体原子质量  $m_{ag}$ , 反比于靶粒子质量  $m_{tp}$ 。  $\bar{\lambda} = kT/(\sqrt{2}\sigma) \cdot p$  为平均自由程,  $k, T, \sigma$  分别表示

基金项目: 河北省自然科学基金(500084; 503125)资助课题。

作者简介: 王英龙(1965.11-), 男, 河北大学副教授, 光学专业硕士生导师, 博士研究生, 主要从事激光与物质相互作用研究。 E-mail:hdwangyl@sina.com

Boltzman 常数、环境温度、碰撞截面,  $p$  为环境气压。从而得到单位脉冲烧蚀下到达衬底的粒子数为

$$\eta_d = \omega_d \exp(-\gamma_d p) \quad (2)$$

式中  $\gamma_d = \sqrt{2} \beta \sigma d / (kT)$ ,  $\omega_d$  为靶表面单位时间产生的粒子数。(2)式表明, 随着环境压强的增大, 到达衬底的粒子数指数衰减, Sturm 等<sup>[2]</sup>有关 Ag 粒子的 TOF 测量证实了这一点。

激光与靶材相互作用, 烧蚀产物初始速率  $v_0$  遵从 Maxwell 分布<sup>[3]</sup>  $f(v_0)$ , 烧蚀产物在环境气体中做有阻尼的流体运动, 其动力学行为满足<sup>[3]</sup>,

$$m_p \frac{dv}{dt} = -\alpha v^2 \quad (3)$$

这里, 阻尼系数  $\alpha = \frac{C \sigma \rho}{2}$ , 环境气体密度  $\rho = \frac{m_{ag} p}{kT}$ 。

对于二次溅射过程, 假定几率与入射粒子的动能成正比, 单位时间使薄膜的粒子数减少, 即

$$\eta_{rs} = \int_0^{\infty} \beta' \left( \frac{1}{2} m_p v^2 \right) N_0 f(v_0) dv_0 = \omega_{rs} \exp(-\gamma_{rs} p) \quad (4)$$

其中,  $\beta'$  为与薄膜结构参数有关的量, 且

$$\gamma_{rs} = \frac{C \sigma d}{2kT} \frac{m_{ag}}{m_p} \quad (5)$$

从实验结果来看, 就单原子靶材 Ag 或 Si 等而言,  $\gamma_{rs}$  比  $\gamma_d$  大。

薄膜总生长率即沉积率与二次溅射率之差,

$$f(p) = [\omega_d \exp(-\gamma_d p)] \left\{ 1 - \frac{\omega_{rs}}{\omega_d} \exp[-(\gamma_{rs} - \gamma_d)p] \right\} \quad (6)$$

随着气压的增大,  $[\omega_d \exp(-\gamma_d p)]$  减小而  $1 - (\omega_{rs} / \omega_d) \times \exp[-(\gamma_{rs} - \gamma_d)p]$  增大, 即沉积和二次溅射之间有竞争, 存在总生长率的极大值。由

$$\frac{\partial f}{\partial p} = \omega_{rs} \gamma_{rs} \exp(-\gamma_{rs} p) - \omega_d \gamma_d \exp(-\gamma_d p) \quad (7)$$

$$\text{当} \quad p_m = \frac{1}{\gamma_{rs} - \gamma_d} \ln \frac{\omega_{rs} \gamma_{rs}}{\omega_d \gamma_d} \quad (8)$$

生长率取最大值。因为  $\gamma_{rs} / \gamma_d$  与  $m_{ag}$  无关, 且  $\gamma_{rs}, \gamma_d$  均与  $m_{ag}$  成正比, 则由(8)式可以看出, 在其它条件不变的情况下, 充不同环境气体, 生长率的峰值压强  $p_m$  与环境气体原子质量  $m_{ag}$  成反比。相应最大生长率为

$$f(p_m) = \left( 1 - \frac{\gamma_d}{\gamma_{rs}} \right) \omega_d \left( \frac{\omega_d \gamma_d}{\omega_{rs} \gamma_{rs}} \right)^{\gamma_d / (\gamma_{rs} - \gamma_d)} \quad (9)$$

不因气体种类改变而变化。

## 2 实验结果与分析

T. Scharf 等<sup>[4]</sup>实验研究了在 He, Ne, Ar, Xe 环境下烧蚀 Ag 靶的薄膜生长率与环境气压的关系, 结果表明, 其它条件相同, 不同种类环境气体相应生长率峰值压强与气体原子质量倒数成正比。

为了和计算结果比较, 需对不同气体下的生长率进行模拟。但由于  $T, \beta$  等参量难于确定, 由实验

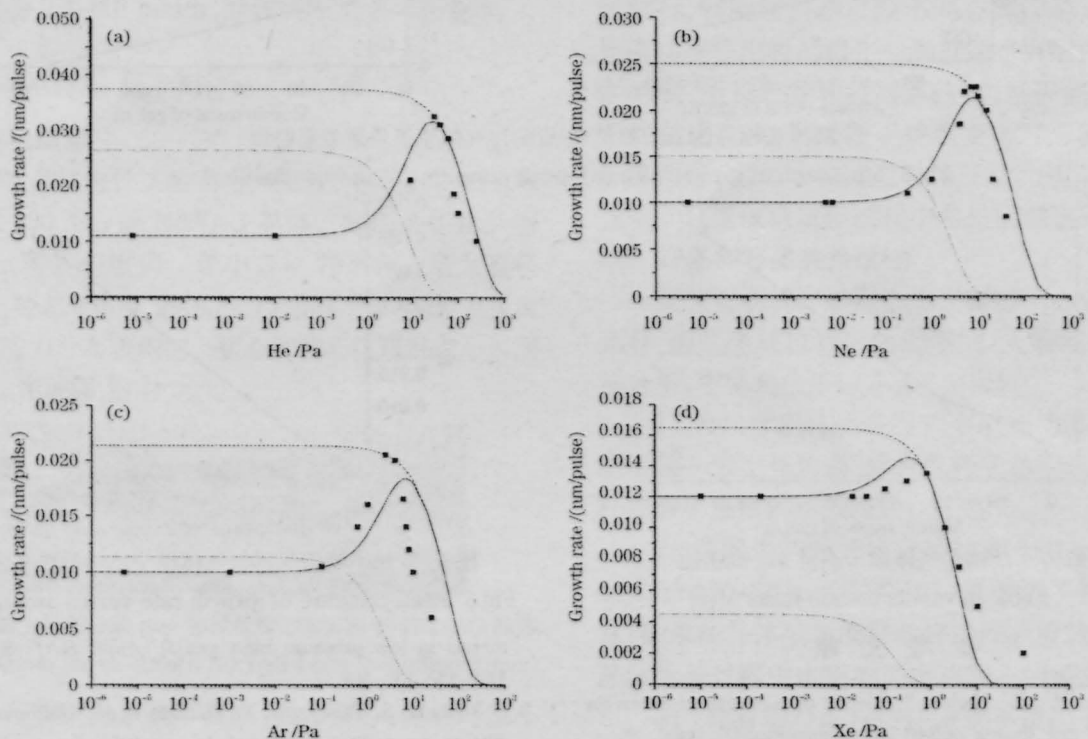


图2 不同种类气体下生长率与气压关系曲线

Fig.2 Growth rate versus pressure for deferent gases

数据中算出  $\omega_d, \omega_{rs}$  及  $\gamma_d, \gamma_{rs}$ , 然后进行分析。模拟所得生长率与气压关系曲线如图 2 所示, 图中(a)~(d)分别对应充 He, Ne, Ar, Xe 惰性气体的相应结果,  $\omega_d, \omega_{rs}$  及  $\gamma_d, \gamma_{rs}$  如表 1 所示。图中虚线代表沉积率, 点线代表二次溅射率, 实线为生长率曲线, 而实验结果以方点示出, 理论与实验符合较好。

表 1 图 2 中使用的模拟参数

Table 1 Parameters used in Fig.2

	$\omega_d$	$\omega_{rs}$	$\gamma_d$	$\gamma_{rs}$
He	0.374	$0.264 \times 10^{-3}$	4.725	0.113
Ne	0.250	$0.150 \times 10^{-2}$	1.515	0.364
Ar	0.214	$0.114 \times 10^{-2}$	1.646	0.395
Xe	0.165	0.045	0.25	6

从图 2 可以看出, 沉积率  $\eta_d$  总大于二次溅射率  $\eta_{rs}$ , 二者均随环境气压的增大呈指数衰减, 但后者衰减较前者快。当低气压时, 两者之差, 即总生长率变化很小; 气压增大到一定程度, 由于  $\eta_{rs}$  的急剧下降导致总生长率快速增加; 继续增大气压,  $\eta_{rs}$  已下降

到近似为零, 沉积  $\eta_d$  的减小起主导作用, 致使总生长率迅速下降。

曲线的生长率峰值以及峰值气压与实验值均存在一定偏差, 致使峰值不随气体种类改变[图 3(a)], 峰值气压也不与气体原子质量成严格反比关系[图 3(b)]。出现这一情况很正常, 因为理论分析是以  $\gamma_d, \gamma_{rs}$  与气体原子质量  $m_{ag}$  成正比为前提的, 但文献[4]采用了微量天平来测量膜厚和生长率, 计及了大颗粒的影响。在(5)式中的靶粒子质量  $m_p$  不再为常数, 不同种类环境气体对大颗粒的阻碍作用不同, 导致  $\gamma_d, \gamma_{rs}$  不严格与气体原子质量  $m_{ag}$  成正比(图 4)。直线斜率增大, 意味着大颗粒的减少, 就是说, 采用与烧蚀材料原子质量近似相同的原子气体作为缓冲, 可有效地避免大颗粒出现, 有利于提高薄膜粒度的均匀性。考虑到  $\gamma_d$  与  $m_{ag}$  的非线性因素, 可以得到生长率峰值气压与气体原子质量的关系曲线如图 5。同样, 扣除掉大颗粒导致的  $\omega_d$  和  $\omega_{rs}$  的影响, 生长率峰值  $\frac{f(p_m)}{\omega_d(\omega_d/\omega_{rs})^{\gamma_d/(\gamma_d-\gamma_{rs})}}$  约为 0.83, 近似为常数。

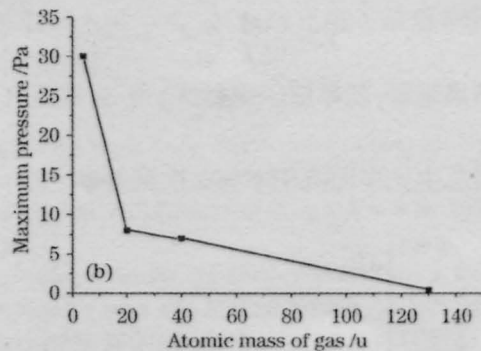
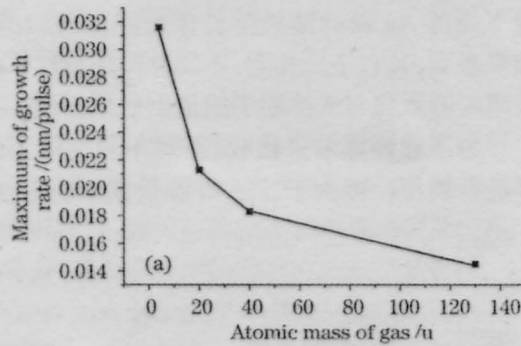


图 3 生长率峰值 (a), 峰值气压(b)与气体原子质量关系曲线

Fig.3 Maximum of growth rate (a), peak pressure (b) versus atomic mass

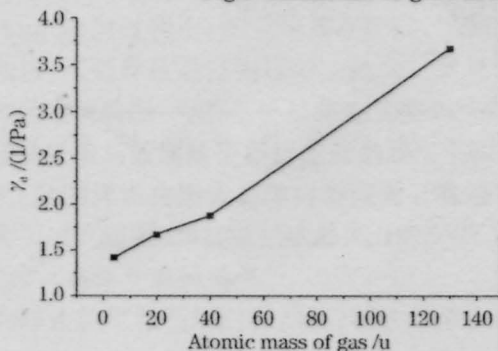


图 4  $\gamma_d$  不严格与气体原子质量  $m_{ag}$  成正比

Fig.4  $\gamma_d$  versus atomic mass

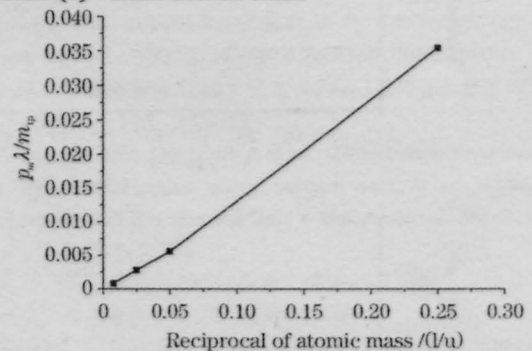


图 5 生长率峰值气压与气体原子质量的关系曲线

Fig.5 Peak pressure of growth rate versus atomic mass

参 考 文 献

1 T. Scharf, H. U. Krebs. Influence of inert gas pressure on deposition rate during pulsed laser deposition[J]. *Appl. Phys. A*, 2002, **75**:551-554  
 2 K. Sturm, S. Fahler, H. U. Krebs. Pulsed laser deposition of

metals in low pressure inert gas[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2000, **154-155**:462-466  
 3 T. Yoshida, S. Takeyama, Y. Yamada *et al.*. Nanometer-sized silicon crystallites prepared by excimer laser ablation in constant pressure inert gas[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(13): 1772-1774