

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

范永昌 安承武 宁 波 陆冬生 李再光

(华中理工大学激光技术国家实验室, 武汉 430074)

提 要

采用飞行时间谱技术, 测量了准分子激光烧蚀沉积高温超导薄膜过程中, 由靶面出射粒子的飞行速度。研究了粒子速度与充氧压及其激光能量密度的关系。讨论了高能粒子在薄膜原位低温外延生长中的作用。

关键词: 激光烧蚀; 飞行时间谱; 粒子速度。

一、引 言

自从美国贝尔通信研究实验室和纽约州立大学巴佛罗分校超导研究所等机构领先采用准分子激光烧蚀沉积法(Excimer Laser Ablation Deposition)成功地制备出高温超导薄膜以来^[1~3], 激光烧蚀沉积的方法已经成为新型超导薄膜及其高温超导微电子元件制备的一项重要工艺^[4]。实验研究表明, 采用激光烧蚀沉积法能够在较低的基片温度($<550^{\circ}\text{C}$)条件下、原位外延生长出性能优良的高温超导薄膜, 其原因除了在制膜过程中靶面上各种元素具有一致的脱出率以及出射粒子中含有大量激发和离化态的原子、分子外^[5~6], 还与较大的粒子速度密切相关^[7~10]。因而从实验上精确地测量出射粒子的飞行速度对于深入了解激光成膜的机理、改善成膜的实验条件具有重要的意义。

基于以上考虑, 我们采用飞行时间谱(Time of Flight Spectra)技术, 对激光烧蚀沉积过程中靶面出射粒子的飞行速度进行了测量。同时还研究了粒子速度与充氧压及其激光能量密度的关系。并对动能较大的沉积粒子在薄膜外延生长中的作用进行了讨论。

二、实验和结果

1. 实验原理与装置

在激光烧蚀沉积高温超导薄膜的过程中, 每一个光脉冲照射到靶体上时, 靶面就有一部分物质喷射出来, 并沿着靶面的法线方向飞行, 最终沉积到成膜基片上。在粒子的飞行过程中, 由于相互强烈的碰撞和粒子对光的再吸收, 基态的粒子不断地被抽运到较高的激发态, 而激发态的粒子则很快地通过辐射跃迁回到基态, 故粒子离开靶面沿着法线方向飞行时, 将会有有一个短暂而持续的发光过程。因此, 可以通过检测粒子束先后经过空间两个位置 d_1 和

d_2 (d 为采光点距靶面的距离)时发出光信号的时间 t_1 和 t_2 , 计算求得粒子束团在空间两点间的平均飞行速度 $V^{[8]}$ ($V = \frac{d_2 - d_1}{t_2 - t_1}$)。并且可以从测得光信号的强速——时间波形曲线推知粒子速度的大致分布规律^[9]。

在制膜的过程中, 激光的重复频率一般为 5~10 Hz, 但粒子速度飞行时间谱的测量却只能在单次脉冲激光照射靶面的条件下进行^[8]。本文采用的实验装置如图 1 所示, 其中准分子激光(Lambda Physik; EGM 201)波长 308 nm、脉宽 28 ns、单脉冲能量 400 mJ。快速存贮示波器(TS8123)带宽 100 MHz 光电倍增管 (GDB 333)的响应时间为 2 ns。为了获得较高的法向空间分辨并保持足够的光强响应, 实验中选用了双透镜——光纤集光导光系统。其中双透射和光纤的入射端对中后作为一个整体固定在可沿靶面法线方向自由平移的微动台架上, 以便可以在空间的不同位置对通过的粒子所发出的光信号进行测量。

采集到的光信号经由传导光纤直接送入光电倍增管, 输出的电信号由快速存贮示波器观察和存贮, 并通过接口线路将数字化后的信号波形输送到 HP 9000 计算机处理系统, 最终由绘图仪打印出该测量点的粒子速度飞行时间谱。

对于本实验采用的集光系统, $f_1 = 38 \text{ mm}$ 、 $f_2 = 120 \text{ mm}$, 光纤芯径 10^{-2} mm , 由几何光原可知, 该系统的空间分辨优于 $5 \times 10^{-3} \text{ mm}$ 。

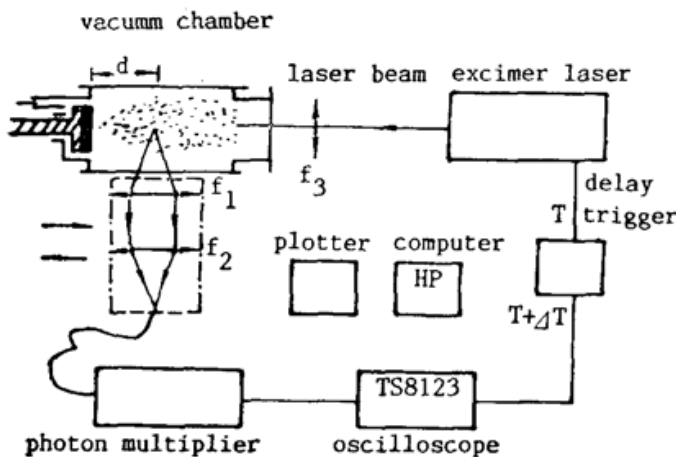


Fig. 1 Experiment Schematic and Arrangement

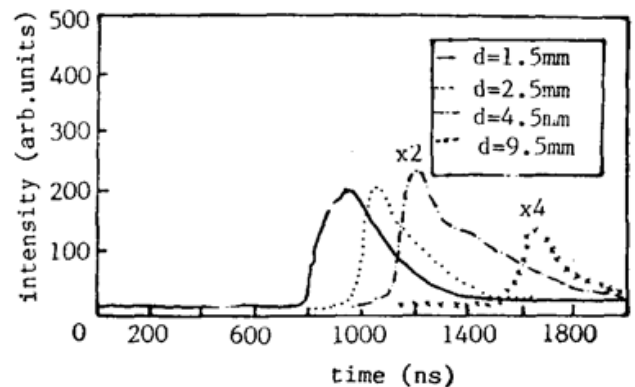


Fig. 2 The Time of Flight Spectra of Ejected Particals

2. 实验结果

采用上述的实验方法, 以 $Y_1Ba_2Cu_3O_x$ 超导块材作为靶体, 在激光能量密度 1.5 J/cm^2 、真空室内充氧压 200 mTorr 的典型制膜条件下, 对出射粒子的飞行时间谱进行了测量。图 2 代表性地给出了在空间不同位置对粒子发光信号的测量结果。由于测得的光信号随着采用光位置不断远离靶面, 其强度下降十分迅速, 因而为了便于观察, 画在同一张图上相应较弱的信号已分别放大了几倍(图示 $\times n$)。显然, 随着采光点位置的不断远离靶面, 测得的光信号在时间轴上依次后延。计算结果表明, 靶面出射的粒子其飞行速度为 $0.75 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 。

在光电倍增管前部安放一个中心波长 5320 \AA 、带宽为 10 \AA 的窄带滤光片作为窗口, 我们还选择测量了 Y^{++} 离子 (5320.7 \AA) 的飞行时间谱, 实验结果如图 3 所示。采用相同的计算方法求得 Y^{++} 离子的飞行速度为 $0.87 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 。

表 1 列出了在激光能量密度为 1.5 J/cm^2 时, 不同氧压下粒子速度的测量值。从表中

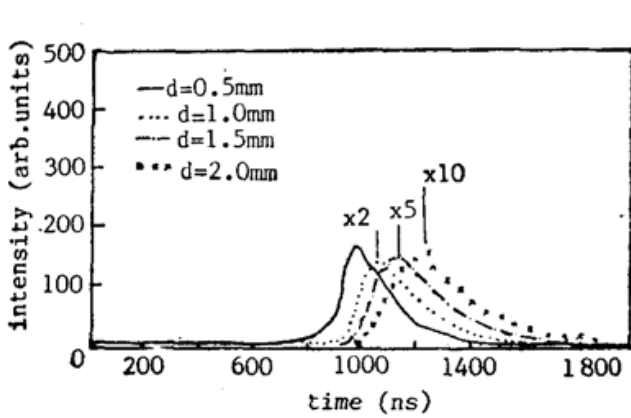


Fig. 3 The Time of Flight Spectra of Ejected Y^{++} Ions

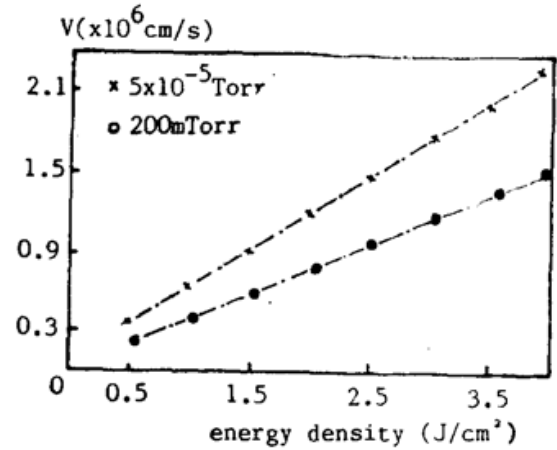


Fig. 4 Ejected Partical Velocities VS Oxygen Pressure

可以看出,在真空度较高的压力范围内,粒子的速度随着真空度的降低而缓慢地减小。即使充入的氧气压力达到 500 mTorr 时,粒子的速度也仅从 5×10^{-5} Torr 时的 1.02×10^6 cm/s 减小到 0.62×10^6 cm/s。然而当氧气压从 500 mTorr 开始继续增加时,粒子速度的减小则变得十分迅速,气压升高到 50 Torr 时粒子速度减小到 0.05×10^6 cm/s。达到大气压后粒子速度降到 2×10^4 cm/s,相对高真空下的粒子速度已降低了近两个数量级。

Table 1 The Partical Velocities Measured at different Oxygen Pressure

Pressure Velocity	Torr								
	5×10^{-5}	5×10^{-4}	5×10^{-3}	5×10^{-2}	5×10^{-1}	1	10	50	760
cm/s	1.02×10^6	9.8×10^5	8.6×10^5	7.3×10^5	6.2×10^5	2.3×10^5	8×10^4	5.2×10^4	2.1×10^4

图 4 为粒子速度与照射靶面激光能量密度的实验关系曲线。测量结果表明,粒子速度随着激光能量密度的增加而线性增加,并且在高真空的情况下速度增加更为显著。

三、讨 论

由测量结果看到,在典型的激光制膜条件下,出射粒子的飞行速度一般可达 10^6 cm/s 的量级。此时出射粒子中的 Y、Ba、Cu 原子相应的动能分别为 46.4、71.7 和 32.2 电子伏特,而对于具有相同速度量级的分子簇团 (Molecular Cluster),其动能甚至会高达上百电子伏特。这类动能较大的出射粒子沉积在成膜表面上足以打断原子和分子的结合键,发生碰撞注入,加强表面原子的内扩散。这些作用机制类似于离子辅助沉积,有助于改善薄膜的结构和形态^[7]。更为重要的是,动能较大的粒子沉积到基片上后能够释放出更多的能量,提高成膜表面的有效温度,有利于原子的迁移和排列。这是采用激光制膜方法能够在较低的基片温度下,实现高温超导薄膜原位外延生长的重要因素之一。

激光制膜时,充入一定气压的氧气能够提高沉积粒子中氧化物分子的比例,这可在一定程度上克服和解决薄膜由于缺氧而不能形成正交超导相的困难。但根据本文的测量结果,实

际制膜时充入的氧气压力不宜过高,否则由于粒子和气体分子频繁的碰撞,飞行速度将大为降低,从而激光制膜沉积粒子具有较高速度的优势将会丧失。

在氧气压为 10^{-2} 至 10^{-5} Torr 范围内,分子运动的平均自由程约在 $1\sim 10^3$ cm 之间。这意味着出射粒子在从靶面飞行到相距 5 cm 的基片上的过程中仅会和氧气分子发生有限的少数几次碰撞。因而有这一压力范围内,随着真空度的降低粒子的速度仅会缓慢地减小。然而当氧气压升高到 500 mTorr 以上后,粒子每飞行 1 cm 将会和气体分子发生几十到上百次的碰撞,因此粒子的速度将迅速减小,故从提高薄膜氧含量并同时保持沉积粒子具有较大动能两个方面综合考虑,充入的氧气压力维持在几十到几百 mTorr 范围内为宜。同时,提高激光的能量密度也可在一定程度上减小由于气压升高对粒子速度的不利影响。

由于采光位置离开靶面的距离大于 1.5 cm 后,光信号已减弱到探测系统难以响应,因此本文给出的速度值均是在距靶面 1.5 cm 空间范围内测得的粒子的平均飞行速度。

参 考 文 献

- [1] A. Inam *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**, No. 10 (Sep), 908.
- [2] S. Witanachchi *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**, No. 3 (Jul), 236.
- [3] B. Roas *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**, No. 16 (Oct), 1557.
- [4] D. Bauerle; *Appl. Phys.*, 1989, **A48**, No. 6 (Jun), 527.
- [5] O. Auciello *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **53**, No. 1 (Oct), 72.
- [6] T. J. Geyer *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**, No. 5 (Jan), 469.
- [7] H. Sankur, J. T. Cheung; *Appl. Phys.*, 1988, **A47**, No. 4 (Aug), 271.
- [8] P. E. Dyer; *Appl. Phys. Lett.*, 1988., **53**, No. 6 (Aug), 534.
- [9] J. P. Zheng *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**, No. 3 (Jan), 280.
- [10] C. Girault *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**, No. 20 (May), 2035.

The time of flight spectra analysis of ejected partical velocities during laser deposition of high Tc superconducting film

FAN YONGCHANG, AN CHENGWU, NING BO, LU DONGSHENG AND LI ZAIGUANG

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

(Received 17 September 1990, revised 15 November 1990)

Abstract

The time of flight spectra technique was adopted to measure the velocities of ejected particals from the target surface during the process of laser deposition of high Tc superconducting film. The dependence of velocities on oxygen pressure and laser energy density was studied. The mechanism of producing high energy particals and its relevance to the thin film formation is discussed.

Key words: laser ablation; time of flight spectra; partical velocities.