

文章编号: 1001-4322(2002)06-0873-04

脉冲激光气相沉积技术及其在 ICF 薄膜靶制备中的应用*

吴卫东, 许 华, 魏 胜, 唐永建, 陈正豪

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 在 ICF 实验及天体物理的辐射不透明实验中,经常用到多层薄膜靶,激光脉冲气相沉积 (PLD) 技术是制备多层薄膜靶的较好方法。论述了 PLD 技术的原理、实验方法和装置的设计,用该方法初步制备了原子级光滑的 Cu 及 Cu/Fe 薄膜。Cu 薄膜的均方根粗糙度为 0.2nm,Fe 薄膜的均方根粗糙度为 0.4nm。

关键词: 脉冲激光气相沉积; ICF; 靶制备

中图分类号: TL639.11 **文献标识码:** A

在间接驱动 ICF 实验中,驱动燃料靶丸的能量来自激光加热黑腔产生的软 X 射线,因此改善黑腔的材料以增强产生软 X 射线的能量和提高软 X 射线的利用率是一个重要的问题,而多层膜和混合膜是解决这一问题的有效途径;同时在进行辐射不透明度的研究时也常常用到多层靶和合金靶。因此,多层金属薄膜靶的制备技术日益受到人们关注。

脉冲激光器在过去的三十多年被用来产生高温高密度等离子体。二十世纪八十年代以来,人们开始使用功率密度稍低的准分子激光器来沉积薄膜材料^[1~6]。利用大功率激光的热效应来制备薄膜^[7~9],其原理是将激光束经过窗口引入真空容器内,照射并加热蒸发蒸镀材料,使其沉积在基片上。这种方法的特点可概括如下:(1) 可以蒸镀能吸收激光的高熔点物质(如石墨,其熔点 $> 3\ 500$);(2) 可得到极大的蒸发速率;(3) 使用脉冲激光仅使靶表面层熔化、蒸发,蒸镀方法特殊;(4) 材料加热源与蒸镀材料、基片不处于同一腔室,因此容易控制蒸镀环境气氛。例如可使环境气氛保持在超高真空下,同时引入合适的气体,与蒸发原子气体发生反应,边反应边蒸镀。因此,脉冲激光气相沉积具有适用材料范围广、薄膜纯度高、表面平滑等优点。它十分适用于制备 ICF 特种薄膜,如多层金属膜、多层金属/介质薄膜和多层金属/有机物薄膜等。本文在介绍脉冲激光气相沉积 (PLD) 技术原理的基础上,重点介绍了一种 PLD 装置的设计及所制膜的性能。

1 脉冲激光气相沉积的基本原理

脉冲激光气相沉积与其它的气相沉积有很大的不同,由激光与靶表面相互作用而形成的高温等离子体始终沿着垂直于靶表面方向绝热膨胀,并形成羽辉。喷射出的粒子动能在 $10 \sim 100\text{eV}$ 之间^[11],其粒子速度的分布比理想的 Maxwell 分布要宽^[10~12]。

PLD 技术原理见图 1。根据激光与靶材料相互作用类型,可将 PLD 分为三个独立的过程。

1.1 激光与靶的相互作用

在脉冲激光蒸发技术 (PLE) 中,激光和固体的相互作用包含两个方面:激光与靶材基体的相互作用;激光与从靶材上蒸发出的等离子体的相互作用。由于蒸发潜热的影响,蒸发过程吸收相变潜热将引起表面温度下降。

1.2 脉冲激光与蒸发物的相互作用

由于激光照射而导致表面温度升高,引起正离子、电子和中性原子从靶表面逸出(此时激光能量超过阈值

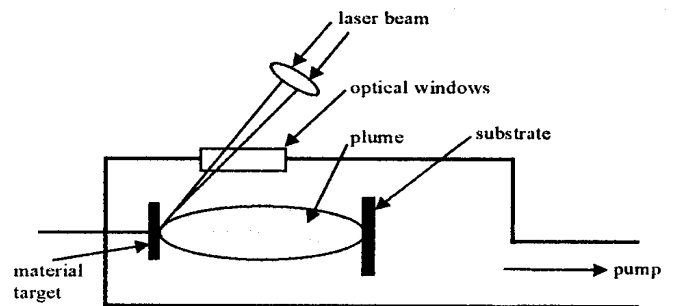


Fig. 1 Principle of PLD technology
图 1 脉冲激光沉积技术原理

* 收稿日期:2002-02-22; 修订日期:2002-07-12
基金项目:国家 863 惯性约束聚变领域资助课题
作者简介:吴卫东(1967-),男,副研究员,主要从事薄膜物理研究工作;绵阳市 919-987 信箱。

能量 E_{th})。这些被蒸发出来的物质反过来又进一步与激光相互作用,吸收和反射激光能量,其温度进一步提高。由于沉积薄膜的激光蒸发在较低的功率密度下发生,由此产生的等离子体温度在 10^4 K 左右。应当注意到,非常低的电子密度和较高的中性原子密度,使得正离子也较少(准电中性的要求),等离子体吸收激光能量的机制主要是电子-离子碰撞,也就是对诱导电流的阻抗力,吸收主要通过逆轫致辐射过程,这个过程包括了自由电子对光子的吸收。

由于激光诱导的等离子体边缘迅速膨胀,电子和离子的密度随时间非常快地减小,这就使得等离子体变得对激光来说是透明的,而这个透明区域离靶面较远。接近于靶表面处等离子体密度随蒸发粒子的增加而恒定的增加,因而在靶表面的附近形成一个不断吸收激光能量的膜层,吸收时间为一个脉冲时段。激光与靶的作用过程如图 2 所示,它可分为:(a)未被作用的靶区,(b)被蒸发的蒸材区,(c)吸收激光能量的等离子体区,(d)快速膨胀的等离子体外围区。

等离子体吸收与热能转换为动能的快速转换之间存在一个动态的平衡过程,在靶表面存在一个自调制区(self-regulating regime)。这种自调制的过程为:当等离子体对激光的吸收增加时,从表面蒸发的物质就会减少,从而降低了等离子体密度,致使等离子体对激光的吸收减少,反过来使靶表面蒸发物增多,最终达到一个动态平衡,控制着等离子体的恒定温度。在这个区域,等离子体不断吸收激光能量并恒温地向外膨胀,使(c)区的粒子数不断增加。

1.3 等离子体的绝热膨胀和膜的形成

激光脉冲停止后,已形成的等离子体羽辉在真空中绝热膨胀。在这个绝热过程中等离子体的温度与尺寸应满足热力学方程^[13,14]

$$T[x(t) y(t) z(t)]^{-1} = \text{const} \quad (1)$$

式中 γ 为等压比热容与等容比热容之比, $\gamma = c_p / c_v$ 。热能迅速转化为动能,等离子体就获得了高的膨胀速度。各种原子、分子和离子以很高的速度直接喷射到衬底表面,具有很大的动能,这有利于原子在衬底表面迁移并进入合适的晶格位置。

理论推导显示出粒子加速度决定于等离子体的初始温度、尺寸以及粒子的质量。在绝热膨胀过程的初始阶段,不同的粒子具有不同的膨胀速度。但实验证明,在适当的沉积条件下,各种粒子最终以几乎相同的速度到达基片。正因为有这样的特点,所以脉冲激光沉积法能制备出高质量的薄膜。

2 实验装置的设计

在设计 PLD 实验装置时,应考虑的因素有:背景真空度,衬底的加热温度,靶托的设计,光学窗口的位置,激光扫描装置,激光器。

在金属薄膜镀膜过程中,由于脉冲激光打在金属靶上产生的金属蒸气有较高的能量,具有很大的活性,极易氧化。如 Mg、Be 等金属,即使在 10^{-4} Pa 真空度下,也能与真空室中残余的氧反应,生成氧化物并混在金属薄膜中,使得金属薄膜的纯度降低很多,由此可见,欲使 PLD 装置能制备合格的金属膜,其背景真空至少应在 10^{-6} Pa 以上,极限真空应在 5×10^{-8} Pa。

在镀膜过程中,衬底温度是很重要的,不同的材料、结构对衬底温度的要求是不同的。对于绝大多数材料来说,衬底温度在 25 ~ 700 范围内,因此衬底的加热温度在 750 即可满足通常的实验要求。

在制备多层金属薄膜时需经常更换靶材。若更换靶材时破坏真空条件,则薄膜表面易形成一层氧化层,这对下一层金属薄膜的生长是十分不利的,故要求在不破坏真空条件下能实现原位换靶。在我们所使用的设备中,靶托设计成可原位更换 4 种靶材的形式,同时靶可按 0 ~ 100r/min 旋转。

在 PLD 装置上,至少需两个窗口,一个为普通的观察窗,另一个为可透紫外的石英窗口,在我们所设计的 PLD 装置中,共有 5 个光学观察窗,其布局如图 3。其中窗口 1 为激光(248nm)入射口,窗口 2、3 为光谱测量口,

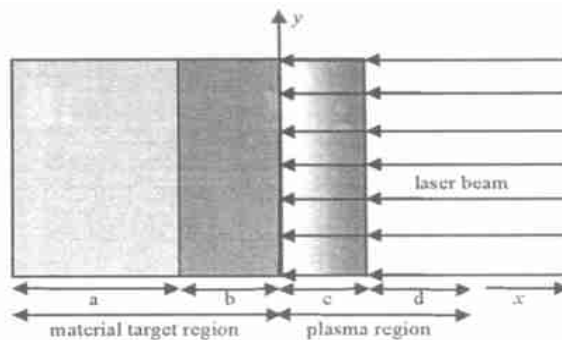


Fig. 2 Interaction between laser and targets

图 2 激光与靶材的相互作用

主要用于测量等离子体羽辉的发射光谱和吸收光谱,窗口 4、5 为薄膜光学性质测量口,主要用于原位测量薄膜厚度(椭圆偏振法可精确到 0.1nm)和薄膜的反射光谱。

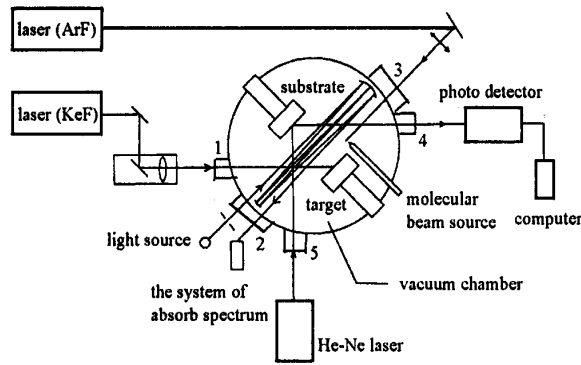


Fig. 3 Distribution of the optical windows

图 3 光学窗口的排布

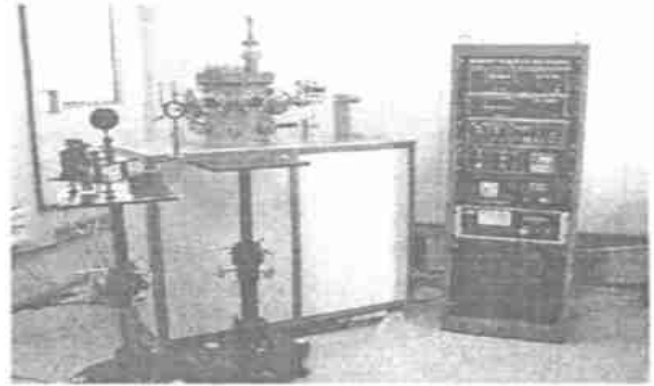


Fig. 4 Equipment of PLD

图 4 PLD 装置

在 PLD 技术中,激光扫描是一项重要的技术措施,它主要使脉冲光束能均匀的打在靶面上,并使薄膜均匀一致。固定打靶会使靶的局布产生较深的小坑,从而使所沉积的薄膜不均匀。激光扫描方式为两种,一种是圆扫描方式,这种方式易使靶表面形成较深的圆槽,从而使靶的寿命缩短,另一种是 X-Y 扫描方式,这种扫描的结果是使靶表面形成一矩形的烧蚀面,从而延长靶的使用期限。

总之,在设计 PLD 装置时,我们即考虑到满足制备 ICF 用实验薄膜的需求,也考虑到它应具有一定的通用性,因此我们设计了如图 4 所示的 PLD 装置。其技术指标为:极限真空 6×10^{-8} Pa;恢复真空 6×10^{-6} Pa;衬底温度 0~750 可控;靶托 0~100r/min 可调,可前后水平移动 100mm;5 个石英光学窗;原位可更换 4 种靶材。

3 制备薄膜的性能分析

近期制备的 Cu 薄膜和 Cu/Fe 薄膜,从其 AFM 图(图 5)可看出,Cu 薄膜的表面光洁度已达到 0.2nm(均方根值)而 Cu/Fe 薄膜则为 0.4nm(均方根值)。由此可见,采用 PLD 技术可以制备高精度要求的 ICF 实验用靶,当然,对于不同的材料和不同尺寸的 ICF 薄膜靶,其工艺参数是不一样的,因而存在许多问题要进一步研究。

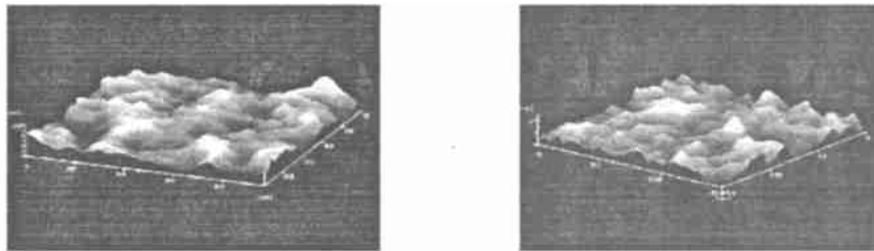


Fig. 5 AFM picture of Cu film and Cu/Fe multi-film

图 5 铜、铜铁多层膜 AFM 形貌

4 结 论

从上述的讨论可知,PLD 技术是一种适用材料范围广,制备薄膜纯度高,表面粗糙度好的薄膜制备方法,它十分适用于制备 ICF 物理实验中基础基准薄膜靶,如多层金属膜,多层金属/介质薄膜和多层金属/有机物薄膜等。用该方法我们成功地制备了原子量级平滑表面的 Cu 及 Cu/Fe 薄膜。

致 谢 本工作得到了实验室张林、陆晓明、郑永铭及其他同志的大力支持和帮助,沈阳科学仪器研究中心的慈连鳌和赵淑艳负责 PLD 真空设备的制造,在此一并表示感谢。

参考文献:

[1] Desanato A M, Mardich M L, Sunshine S, et al. Preparation of a composite target containing BaF₂[J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **52**:1995—2000.
 [2] Mjojani K, Bohandy J, Adrian F J, et al. Superconductivity in bulk and thin films of La_{1.85}Sr_{0.15}CuO₄ and Ba₂YCu₃O₇ [J]. *Phys Rev B*, 1987, **36**: 4036—4038.

- [3] Tallon J L, Buckley R G, Saines M P, et al. Enhancing T_c in $\text{Bi}_{2-x}\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$ from 90 to 101 K by yttrium substitution[J]. *Appl Phys Lett*, 1989, **54** (16):1591—1593.
- [4] Witanachchi S, Kwok H S, Wang X W, et al. Deposition of superconducting Y-Ba-Cu-O film at 400 °C without postannealing[J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **53** (3):234—236.
- [5] Fork D K, Beyce J B, Ponce F A, et al. Preparation of oriented Bi-Ca-Sr-Cu-O thin film using pulsed laser deposition[J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **53**(4):337—339.
- [6] Weimer W A. Plasma emission from laser ablation of the high-temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ [J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **52**(25):2171—2173.
- [7] Amano J. Thin-film deposition using low-energy ion beams (II) Pb^+ ion beam deposition and analysis of deposits[J]. *J Vac Sic Technol*, 1977, **14**:690—694.
- [8] Amano J. Thin film deposition using low energy ion beams (I) system specification and design[J]. *J Vac Sic Technol*, 1976, **15**:59—595.
- [9] Zheng J P, Huang Z Q, Shaw D T. Generation of high-energy atomic beams in laser-superconducting target interactions[J]. *Appl Phys Lett*, 1989, **54**(3):280—282.
- [10] Venkatesan T, Wu X D, Inam A, et al. Nature of the pulsed laser process for the deposition of high T_c superconducting thin films[J]. *Appl Phys Lett*, 1988, **53**(15):1431—1433.
- [11] Nakayama T, Okigama M, Itoh N. Laser-Induce sputtering of Oxides and compound semiconductors[J]. *Nucl Instrum Methods B1*, 1984, **229**:301—306.
- [12] Stritzker B, Pospieszczyk A, Tagle J A. Measurement of lattice temperature of silicon during pulsed laser annealing[J]. *Phys Rev Lett*, 1981, **47**:356—358.
- [13] Pailthorpe B A. Molecular-dynamics simulations of atomic process at the low-temperature diamond (1 1 1) surface[J]. *J Appl Phys*, 1991, **70**(2):543—547.
- [14] Jelle A N, Green W J. Modeling of pulsed laser etching of high T_c superconductors[J]. *Appl Phys*, 1990, **68**(10):5273—5277.

Pulse laser vapor deposition technology and its application in fabrication of the ICF film targets

WU Wei-dong, XU Hua, WEI Sheng, TANG Yong-jian, CHEN Zheng-hao

(Research Center of Laser Fusion, CAEP, P. O. Box 919-987, Mianyang 621900, China)

Abstract: The multi-films targets are often used in the studies of ICF experiment and astrophysical opacity. One of the methods producing these targets is the Pulse Laser Deposition (PLD) technology. In this paper, the principle of PLD technology, experiment method, PLD equipment design and the application in fabrication of the ICF film targets have been described in detail. Using PLD method, the Cu films and Cu/Fe films were been produced. The average roughness of Cu films is 0.2nm and Cu/Fe films is 0.4nm. Experiments shown that the equipment and the methods were suitable.

Key words: pulse laser vapor deposition; ICF; fabrication of film targets