

脉冲激光沉积(PLD)铜薄膜过程的模拟研究

段章山¹, 李润玲¹, 王永仓^{1,2}, 刘婧³

(1、空军工程大学理学院, 陕西西安 710051 2、西北工业大学理学院, 陕西西安 710072 3、河海大学计算机及信息工程学院, 常州 213022)

摘要:通过对 PLD 技术中的等离子体的产生及传播理论的分析,对等离子体的传播规律及基片平面上粒子浓度、速度的分布进行了模拟研究;讨论了 PLD 技术中等离子体的输运机理,为 PLD 薄膜制备提供了理论参考。

关键词:脉冲激光沉积;铜薄膜;等离子体;模拟研究

中图分类号: O484.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1009-3516(2006)04-0085-04

激光脉冲沉积(简称 PLD)过程分为 3 个阶段^[1,8]:脉冲激光和靶材相互作用产生等离子体;等离子体在空间膨胀;等离子体在基片表面沉积成膜^[2]。本文对铜薄膜 PLD 制备过程的前两阶段进行了数值模拟。

1 理论模型

为模型建立以靶材平面为 ZOY 平面,以光斑中心为原点,垂直于靶面指向衬底的方向为 X 正方向的坐标系。

1.1 激光烧蚀靶材

靶材吸收激光束的能量,使部分原子的能量超过了其升华能,这些原子就被蒸发出去,此即激光对靶材的烧蚀过程。靶材被烧蚀的原子数 N 可表示为

$$N = \frac{\rho S_1 \lambda}{4\pi n m} \left(1 - \frac{S_1 \rho E_s \lambda}{4\pi n \tau I_0} \right) \quad (1)$$

其中: n 是靶材折射率; I_0 能量密度; λ 为激光波长; E_s 为靶材的升华能; S_1 为激光烧蚀点的面积; ρ 是靶材的密度; m 是被蒸发的粒子的质量; τ 是脉冲宽度。

1.2 等离子体的空间膨胀

靶面产生的等离子体向空间膨胀的每一个周期,可按有无脉冲激光照射分为两个阶段:第一阶段 $t \leq \tau$,可近似认为是等温膨胀。第二阶段 $t > \tau$,可近似认为是绝热膨胀,膨胀使得等离子体温度迅速下降。各阶段参数有下述方程^[3,5,6]。等离子体的浓度分布:

$$n(x, y, z, t) = \frac{Nt}{4\pi^2 \tau X(t) Y(t) Z(t)} \exp\left(-\frac{x^2}{2x(t)^2} - \frac{y^2}{2y(t)^2} - \frac{z^2}{2z(t)^2}\right) \quad t \leq \tau \quad (2)$$

$$n(x, y, z, t) = \frac{Nt}{4\pi^2 \tau X(t) Y(t) Z(t)} \exp\left(-\frac{x^2}{2x(t)^2} - \frac{y^2}{2y(t)^2} - \frac{z^2}{2z(t)^2}\right) \quad t > \tau \quad (3)$$

等离子体的速度分布:
$$V(x, y, z, t) = \frac{x}{x(t)} \frac{dx(t)}{dt} i + \frac{y}{y(t)} \frac{dy(t)}{dt} j + \frac{z}{z(t)} \frac{dz(t)}{dt} k \quad (4)$$

其中, $X(t), Y(t), Z(t)$ 定义为等离子体边缘的膨胀位置,所谓边缘是指横向(Y 和 Z 方向)等离子体密度降为中心最大密度 60.65% 的地方;纵向(X 方向)等离子体密度降为中心最大密度 37.5% 的地方^[5]。 $\frac{dx(t)}{dt} i$ 、

收稿日期:2005-08-30

基金项目:国家自然科学基金资助项目(60171043);西北工业大学博士论文创新基金(200242)资助项目

作者简介:段章山(1979-),男,山东郓城人,博士生,主要从事薄膜材料的建模与仿真研究。

$\frac{dy(t)}{dt}_j, \frac{dz(t)}{dt}_k$ 为等离子体边缘的膨胀速度。等离子体空间尺寸的变化方程为

$$x(t) \left(\frac{1}{\tau} \frac{dx}{dt} \frac{d^2x(t)}{dt^2} \right) = y(t) \left(\frac{1}{\tau} \frac{dy}{dt} \frac{d^2y(t)}{dt^2} \right) = z(t) \left(\frac{1}{\tau} \frac{dz}{dt} \frac{d^2z(t)}{dt^2} \right) = \frac{kT_0}{M} \quad t \leq \tau \quad (5)$$

$$x(t) \frac{d^2x(t)}{dt^2} = y(t) \frac{d^2y(t)}{dt^2} = z(t) \frac{d^2z(t)}{dt^2} = \frac{kT_0}{M} \left(\frac{x_0 y_0 z_0}{x(t) y(t) z(t)} \right)^{\gamma-1} \quad t > \tau \quad (6)$$

其中, T_0 为等温膨胀阶段等离子体温度, x_0, y_0, z_0 为等温膨胀阶段等离子体边缘的位置。

2 结果与讨论

2.1 初始条件

激光烧蚀点的面积一般在 mm^2 的数量级^[6], 于是在 Y, Z 方向上等离子体边缘的初始尺寸约为 1 mm ; 而在 X 方向上, 由于这个阶段我们将等离子体视为高温高密度的单原子理想气体^[6,7], 因此在垂直于靶材方向上等离子体边缘的初始尺寸近似等于粒子运动的平均自由程, 一般在 10^{-6} m 量级。于是可以令等离子体在 X, Y, Z 方向上膨胀的初始尺寸分别为 $10^{-6} \text{ m}, 10^{-3} \text{ m}, 10^{-3} \text{ m}$ 。其次, 靶材受热蒸发的物理机制决定了等离子体膨胀的初始速度。由于在垂直于靶材方向即 X 方向上的压强梯度比平行靶材方向的压强梯度大得多, 因此, 我们认为 X 方向上蒸发出的粒子遵循单原子分子理想气体 Maxwell 速率分布率, 其初始速率 $v = \sqrt{8kT_0/\pi m}$, 其中 T_0 为靶材的蒸发温度。而在 Y, Z 方向上的速度由于压强梯度小, 所以在这两个方向上初始速度接近零。模拟的初始条件如表 1-3。计算得: $v = 1\,005.3 \text{ m/s}$ 。

表 1 脉冲激光相关参数

λ/nm	t/ns	S_1/mm^2	$I_0/(\text{J} \cdot \text{cm}^{-2})$
308	20	1	2

表 2 靶材相关参数

$M/10^{-23} \text{ g}$	$\rho/(\text{g} \cdot \text{m}^{-3})$	蒸发温度/K	$E_s/(\text{kJ} \cdot \text{g}^{-1})$
9.86	8.960	2 836	5.354 4

表 3 两阶段数值模拟的初始参数

第一阶段				第二阶段				
X	初始位置/m	10^{-6}	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	1 005.3	初始位置/m	0.041 2	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	1 260
Y	初始位置/m	10^{-3}	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	0	初始位置/m	0.041 5	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	98.41
Z	初始位置/m	10^{-3}	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	0	初始位置/m	0.041 5	初始速率/ $(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	98.41

据文献[6]提出的 $IS_1\tau = 3/2ktp'V$, 可得 $T_0 \approx 10^4 \text{ K}$ 。

2.2 等温膨胀阶段的模拟

参考文献[6], 对方程(5)进行向前差分模拟有 $X(i+1) = X(i) + hv_x(i), v_x(i+1) = v_x(i) + ha_x(i), a_x(i+1) = (kT_0/m)/X(i+1) - v_x(i+1)/\tau$ 。对 Y, Z 方向上的差分方法相同。其中 h 为差分的步长, $a_x = d^2X(t)/dt^2$ 为等离子体边缘的加速度。选取 0.028 ns 的步长, 对第一阶段的等离子体的演化进行模拟, 得到边缘及速率演化规律, 如图 1-4 所示。

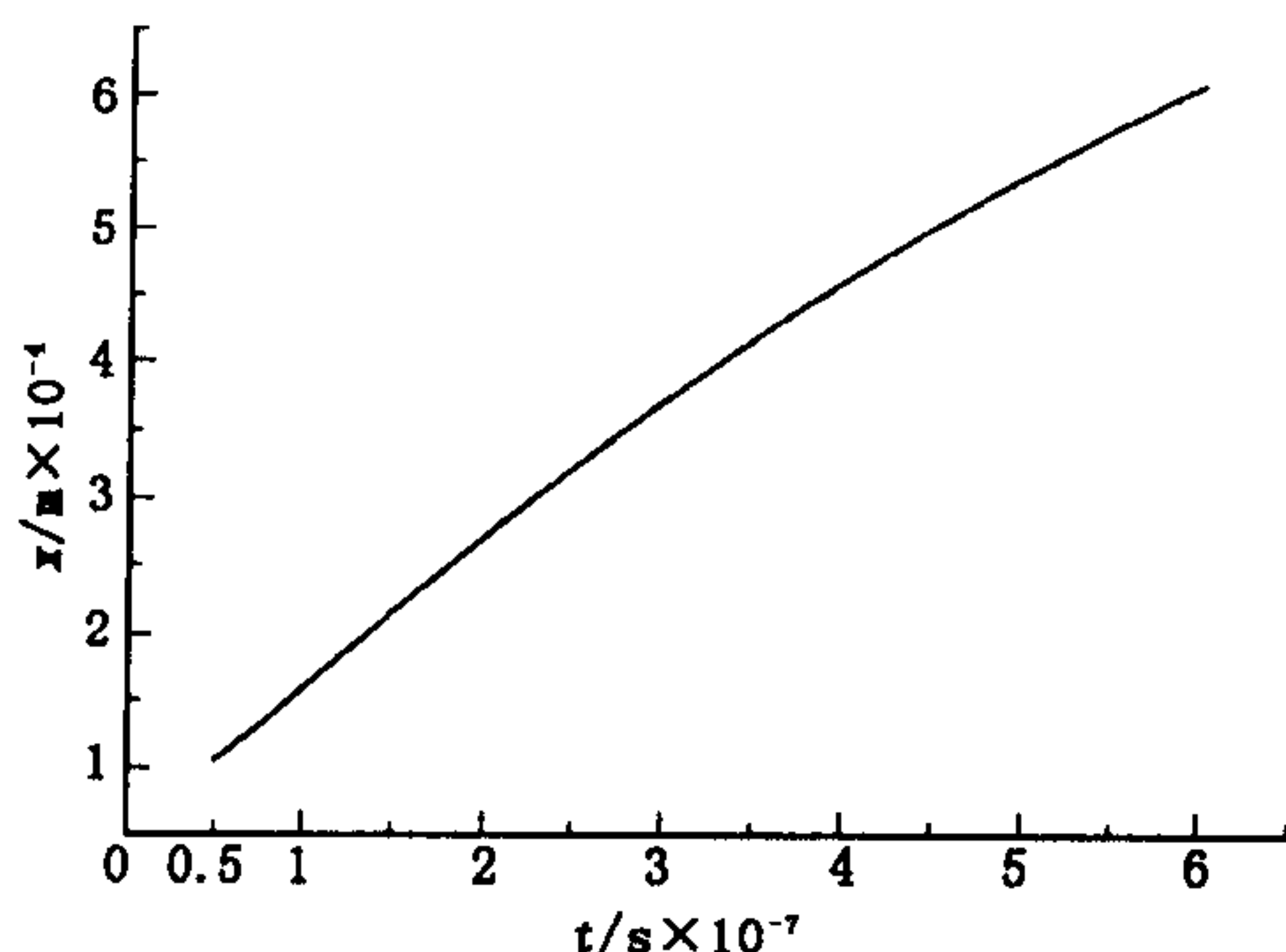


图 1 X 方向等离子体边缘随时间的变化

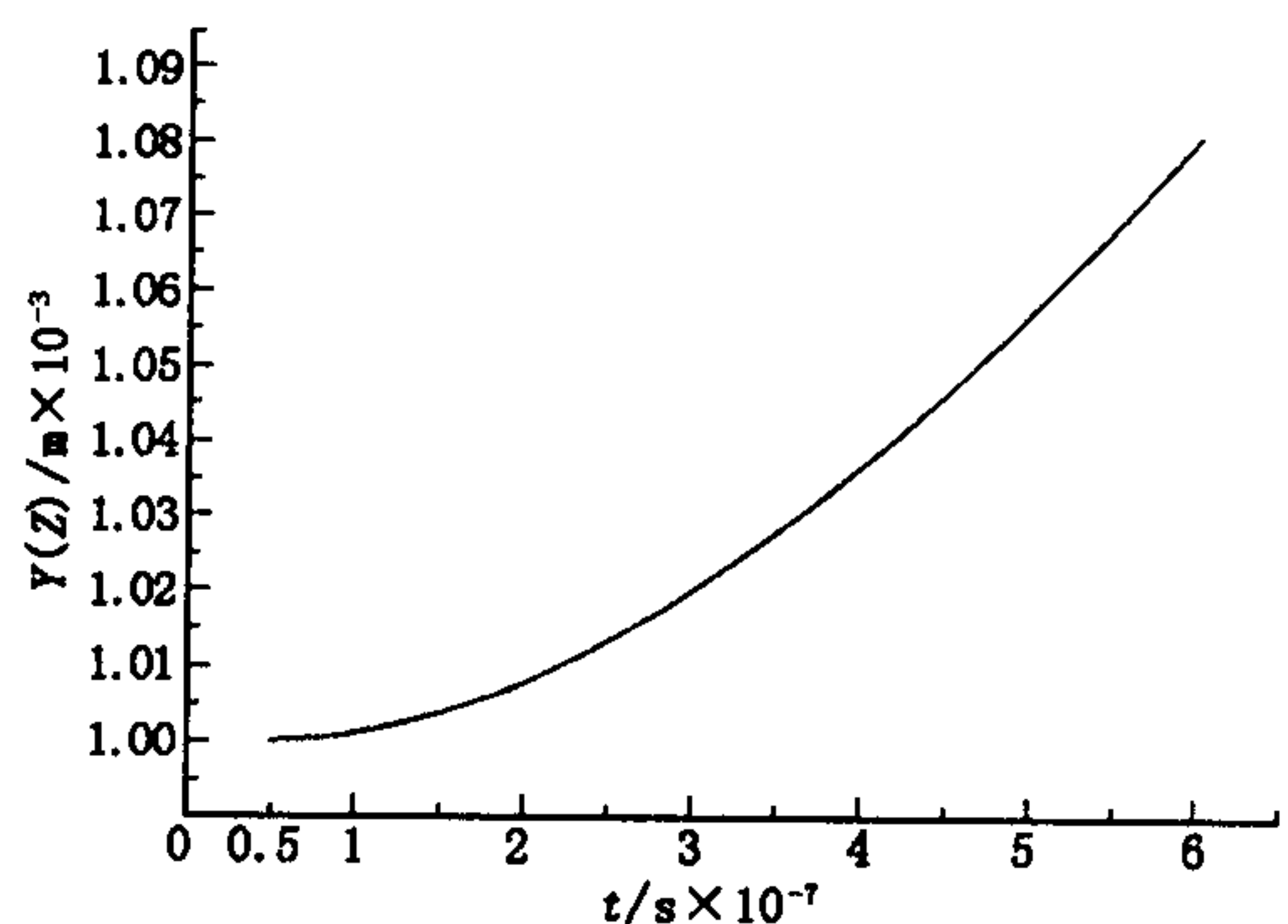


图 2 Y(Z) 方向等离子体边缘随时间的变化

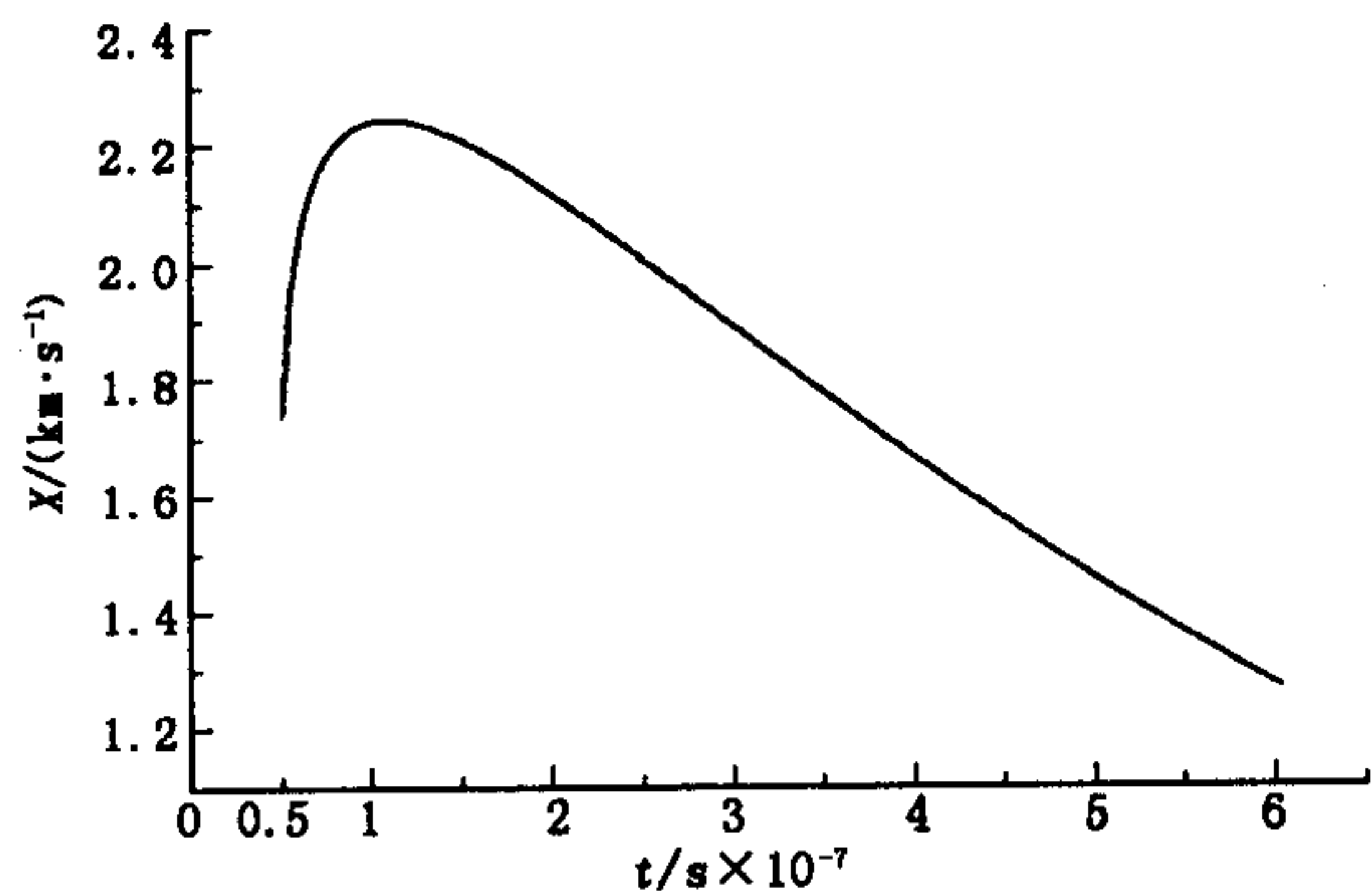


图3 X方向等离子速度的时间分布

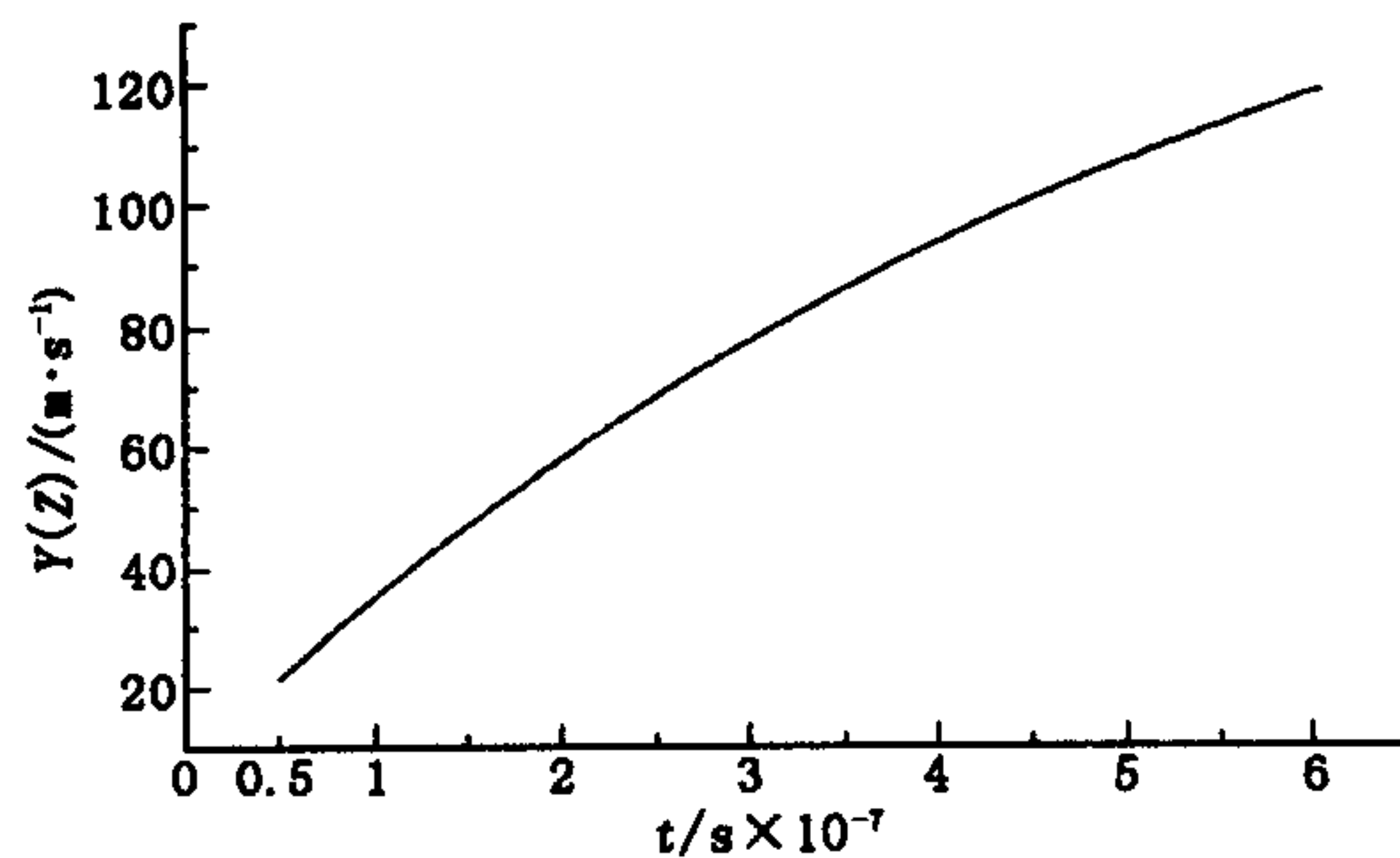


图4 Y(Z)方向等离子体速度的时间分布

图1、图2对比可以看出由于纵向的初始速率不为零,并且等离子体的纵向压强梯度较大,相应的其纵向的加速度在初始时也比较大,故等离子体在纵向上膨胀的较快;而由于横向初始速率为零,加之等离子体的横向压强梯度较小,故等离子体在横向上的膨胀较纵向慢,从而使等离子体余辉呈现出沿纵向拉长的外形,这一点与实验中观察到的现象相符。图3,图4显示纵向等离子速率开始时有一个暴涨的过程,而后其数值也一直大于横向。这除了由于等离子体纵向速度不为零以外,还因为其在基片附近的纵向压强较大,从而使等离子体在此处有一个较大的加速度。

对方程(6)进行向前差分模拟有

$$\begin{aligned}
 X(i) [X(i+1) - 2X(i) + X(i-1)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1} \\
 Y(i) [Y(i+1) - 2Y(i) + Y(i-1)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1} \\
 Z(i) [Z(i+1) - 2Z(i) + Z(i-1)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1} \\
 X(i) [V_x(i+1) - V_x(i)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1} \\
 Y(i) [V_y(i+1) - V_y(i)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1} \\
 Z(i) [V_z(i+1) - V_z(i)] &= h^2 (kT_0/m) [X_0 Y_0 Z_0 / (X(i) Y(i) Z(i))]^{\gamma-1}
 \end{aligned}$$

按表3的初始条件得到边缘及速率演化规律如图5、图6。模拟的结果表示为图5、6,可以看出,在第二阶段等离子体在纵向和横向的边界随着时间的推移,差别逐渐变小。

2.3 基片平面上等离子体的浓度、速率的分布

由方程(2)、(3)、(4),结合等离子体传播规律的数值模拟,可以得出等离子体在衬底平面上的浓度、速率分布规律。由粒子在基片上浓度的分布图可以看出,其从中心向四周的横向分布。

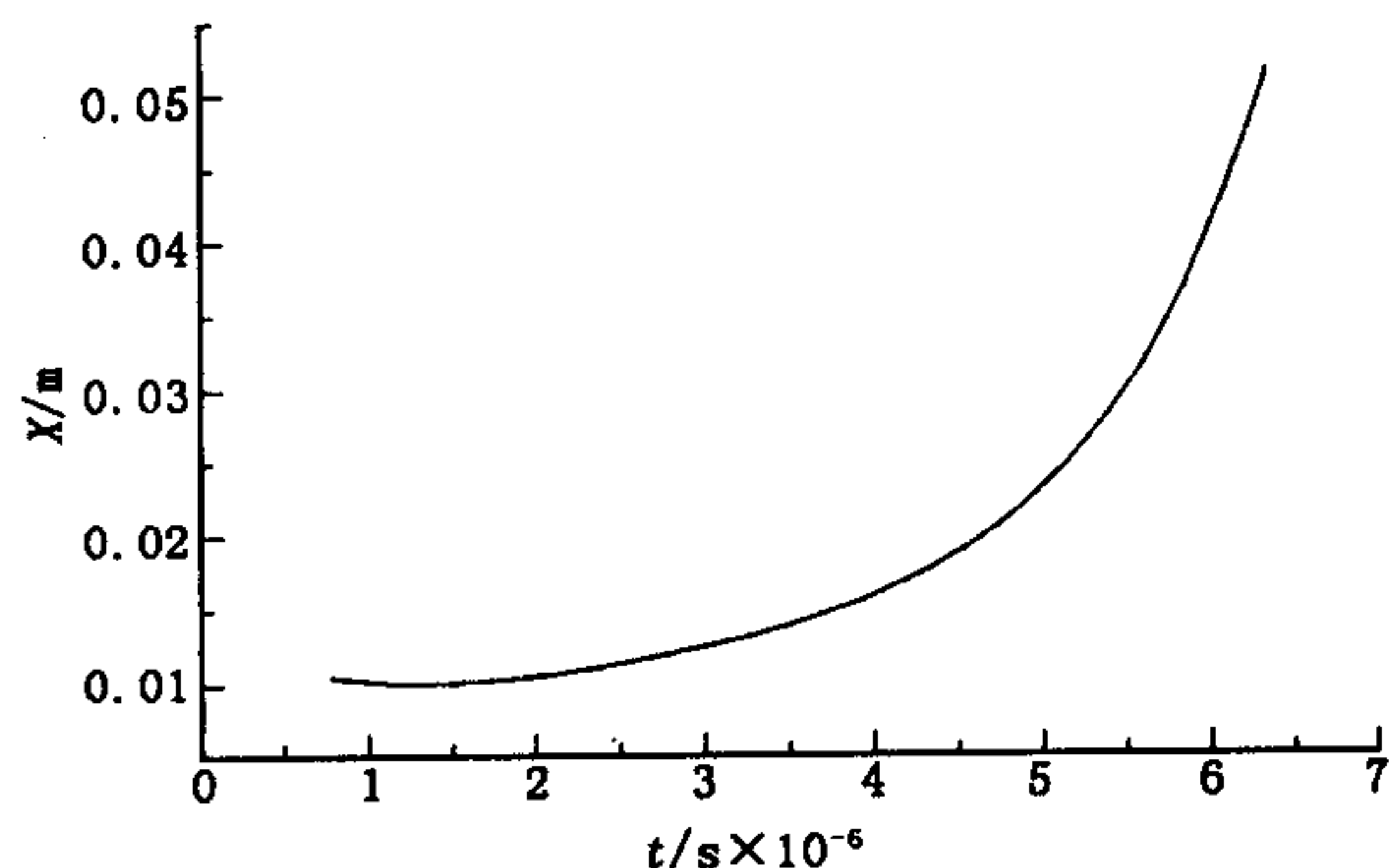


图5 X方向等离子体边缘随时间的变化

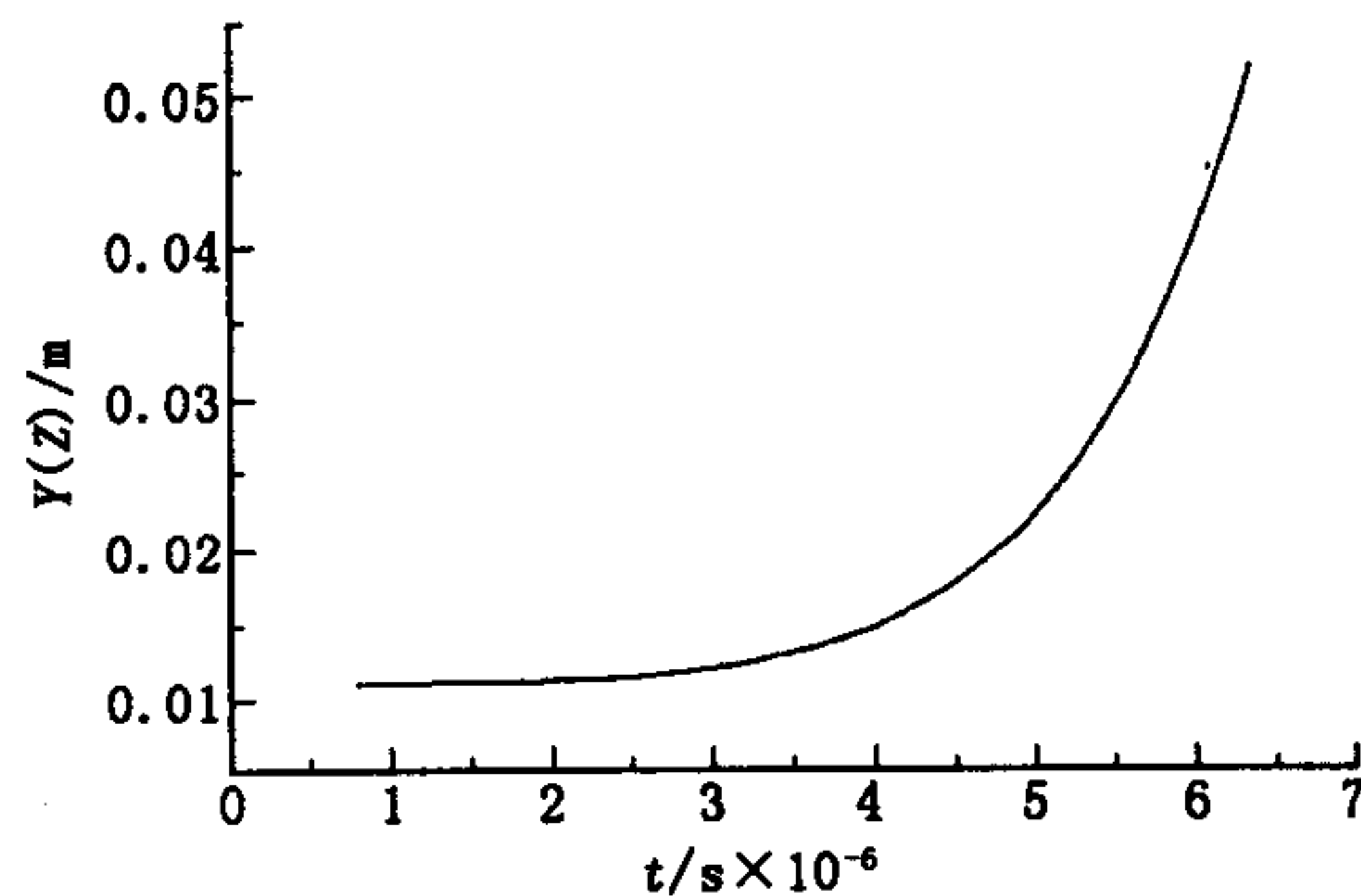


图6 Y(Z)方向等离子体边缘随时间的变化

3 结论

对PLD制备铜薄膜过程中的激光烧蚀靶材产生等离子体及等离子体空间膨胀的两个物理过程进行了数值模拟。修正了文献[3]提出的脉冲激光对靶材烧蚀的方程。模拟了不同距离衬底表面附近的等离子体浓度、速度的分布。结果显示,激光烧蚀靶材由靶材及脉冲激光的有关参数存在方程(1)的关系。等离子体

向空间膨胀,其纵向速度开始时有一个暴涨的过程随后下降趋于稳定,横向速度由等离子体中心向边缘线性增加。等离子体空间位置的演变则因纵向速度大于横向速度而呈现纵向拉长的形态。衬底平面附近的等离子体的浓度由中心向边缘呈现近似高斯分布的形态,且沉积在衬底平面上的离子总量随衬底距离的增加而明显减小;等离子体纵向速度随衬底距离的增加而减小,从而导致离子的能量减小;衬底平面附近的离子浓度分布随着距离的增大变得更加均匀。故在选用沉积距离时应综合考虑等离子体能量和浓度大小、均匀性的因素。

参考文献:

- [1] 叶云霞,王大承,张永康. 脉冲激光沉积制备薄膜动态研究[J]. 江苏理工大学报, 2001, 22(2): 56 - 58.
- [2] 李美亚,王忠烈,林揆训,等. 脉冲激光制备薄膜新技术及其在功能材料中的应用[J]. 功能材料, 1998, 29(2): 133 - 135.
- [3] 李智华,张瑞明,陈中军. KTN 薄膜脉冲激光沉积过程的机理研究[J]. 物理学报, 2001, 50(10): 1956.
- [4] 闫长春,顾济华. 脉冲激光加热材料下的温度场研究[J]. 苏州大学学报, 2003, 19(4): 74 - 78.
- [5] 陈中军,张瑞明,李智华. 脉冲激光沉积 KTN 薄膜动力学过程模拟[J]. 华中理工大学报, 2000, 28(05): 92 - 94.
- [6] 张瑞明,关 丽,李智华. 脉冲激光制备薄膜过程中等离子体演化规律的研究[J]. 物理学报, 2003, 52(01): 241 - 245.
- [7] Singh R K, Narayan J. Pulsed - Laser Evaporation Technique for Deposition of Thin Films: Physics and Theoretical Model [J]. J. Phys. Rev. B, 1990, 41(13): 8843 - 8859.
- [8] 高国棉,陈长乐,王永仓,等. 脉冲激光沉积(PLD)技术及其应用研究[J]. 空军工程学报(自然科学版), 2005, 6(3): 77 - 79.

(编辑:田新华)

Simulation of the Process of Pulsed Laser Deposition of Thin Copper Film

DUAN Zhang - shan¹, LI Run - ling¹, WANG Yong - cang^{1,2}, LIU Jing³

(1. The Science Institute, Air Force Engineering University, Xi'an, Shaanxi 710051, China; 2. Science School, Northwestern Polytechnical University, Xi'an, Shaanxi 710072, China; 3. Science School, School of Computer and Information Engineering, Changzhou 213022, China)

Abstract: By mathematics and theoretic mode, the process of pulsed laser deposition of thin copper film is studied. The evolvement of plasma generated by the pulsed laser is simulated and based on this the distributions of consistency and velocity are discussed. Moreover, the physics mechanism in the process of pulsed laser deposition is explained. The results obtained are compared with the experiments and other articles.

Key words: PLD; thin copper film; plasma; simulated research