

# Простой способ эффективного использования материала мишени при импульсном лазерном напылении тонких пленок

А.С.Кузанын, А.А.Кузанын, В.А.Петросян, С.Х.Пилосян, А.З.Грасюк

*Рассмотрены факторы, определяющие коэффициент полезного использования (КПИ) материала мишени при импульсном лазерном напылении пленок. Проведен расчет испаренного объема мишени при абляции сфокусированным лазерным пучком прямоугольной формы. Предложено и разработано новое устройство для получения тонких пленок методом импульсного лазерного напыления, отличительной особенностью которого является использование расположенной вне напылительной камеры простой оптической системы, состоящей из двух линз и диафрагмы и фокусирующей лазерный пучок на мишень в пятно в виде сектора. С использованием данного устройства проводилось напыление тонких пленок SiO и YBaCuO. После нескольких циклов напыления выявлено, что материал мишени расходуется равномерно со всей поверхности. Максимальный разброс толщины мишени не превышал  $\pm 2\%$  как до напыления, так и после него. Предлагаемое устройство позволяет обеспечить высокий КПИ материала мишени.*

**Ключевые слова:** импульсное лазерное напыление, лазерный пучок, фокальное пятно, мишень.

## 1. Введение

Метод импульсного лазерного напыления (ИЛН) широко используется исследователями для получения тонких пленок самых различных соединений, что обусловлено рядом его преимуществ перед другими методами напыления [1–3]. Использованию метода ИЛН в промышленности мешают его немногочисленные недостатки, основными из которых являются неоднородность толщины напыляемой пленки и низкий коэффициент полезного использования (КПИ) материала мишени. Для преодоления первого недостатка осуществляется ряд усовершенствований традиционного метода ИЛН – взаимное передвижение лазерного пучка, мишени и подложки, а также использование простых или сложных дополнительных устройств [4, 5]. Предложенные усовершенствования позволяют напылять однородные по толщине и составу пленки произвольного размера. Можно констатировать, что первый недостаток метода ИЛН успешно преодолен.

О втором недостатке метода ИЛН несколько подробнее. Напыление пленок этим методом производится за счет абляции материала мишени лазерным пучком. Очевидно, что если мишень и лазерный пучок неподвижны относительно друг друга, то через некоторое время после начала воздействия лазерного пучка в мишени образуется кратер. Возникновение кратера приводит к изменению углового распределения испаренного вещества, т.е. к изменению толщины пленки, напыляемой за единицу вре-

мени на определенный участок подложки. Другим неблагоприятным результатом является перегрев мишени и нарушение ее состава. Перегрев мишени происходит и в случае, когда лазерный пучок фокусируется на всю ее поверхность. Кратер в мишени при такой геометрии метода образовываться не будет, но перегрев мишени произойдет. Итак, при ИЛН в случае неподвижных мишени и лазерного пучка со временем изменяется как толщина, так и состав напыляемой пленки. Поэтому обычно применяется самое простое решение – вращение мишени, которое значительно улучшает ситуацию, препятствуя перегреву мишени, и продлевает время напыления без нарушения состава пленки и углового распределения испаренного вещества. Однако и такая геометрия метода не является решением проблемы. Во вращающейся мишени образуется канавка (рис.1), и угловое распределение испаренного вещества со временем изменяется [6, 7]. После проведения нескольких циклов напыления с изменением расстояния лазерного пучка от центра мишени на ее поверхности образуются концентрические канавки и мишень перестает быть пригодной для дальнейшего использования. При обычной геометрии ИЛН КПИ мишени (доля ее испаренного объема) будет очень низким (0.01–0.02). Когда материал мишени не дорогой, этот недостаток не является существенным. Если же стоит задача получения пленок редких металлов и их сплавов или используется мишень из особо чистых химикатов и изотопов, такой низкой КПИ мишени не может считаться приемлемым.

## 2. Способы повышения КПИ мишени

Приведем несколько известных решений задачи повышения КПИ мишеней при ИЛН тонких пленок. Для дальнейшего использования мишеней, с которых уже проводилось напыление, может применяться шлифовка их поверхности. При этом теряется до 75% материала мишени [8]. Кардинальными, но значительно усложняющими напылительную установку, являются решения, предпола-

А.С.Кузанын, А.А.Кузанын, В.А.Петросян. Институт физических исследований НАН Армении, Армения, 0203 Аштарак;  
e-mail: akuzan@ipr.sci.am, kuzanian@yahoo.com, vahagn.petrosyan@gmail.com

С.Х.Пилосян, А.З.Грасюк. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53;  
e-mail: sp-93@mail.ru, Grasiuk2008@yandex.ru

Поступила в редакцию 31 марта 2013 г., после доработки – 1 ноября 2013 г.

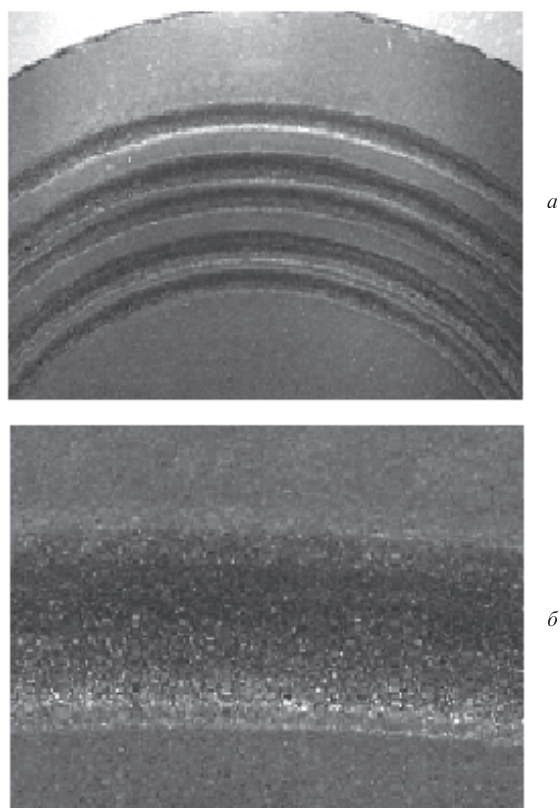


Рис.1. Мишень из  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  диаметром 50 мм после проведения пяти циклов напыления традиционным способом ИЛН при увеличении  $10\times$  (а) и  $60\times$  (б).

гающие управляемые компьютером сканирование лазерного пучка по поверхности большой мишени (рис.2,а) или перемещения мишени относительно неподвижного лазерного пучка в двух взаимно перпендикулярных направлениях (рис.2,б). При этом абляция материала мишени происходит с 90% ее поверхности, обеспечивая тем самым значительное увеличение КПИ мишени [9].

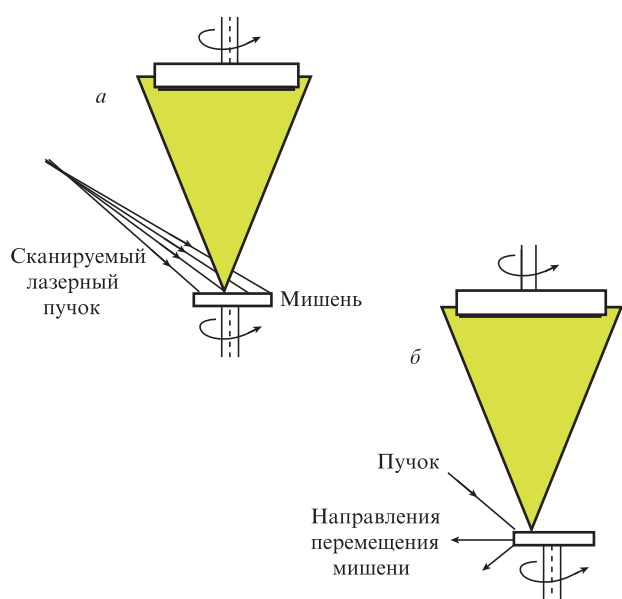


Рис.2. Схемы ИЛН при растривании лазерным пучком поверхности мишени (а) и перемещение мишени относительно лазерного пучка (б).

Простым в реализации является предложение [10]: предполагается, что лазерный пучок делится на четыре части, каждая из которых осуществляет абляцию материала вращающейся мишени с определенного участка ее поверхности. При этом достигается как формирование более широкого плазменного факела испаренного вещества (что способствует повышению однородности толщины напыляемой пленки), так и абляция с большей поверхности мишени. В плане повышения КПИ мишени это решение равносильно простому увеличению размеров фокального пятна. Однако и в данном случае на вращающейся мишени будут образовываться канавки со всеми описанными выше отрицательными последствиями.

Более рациональное предложение запатентовали авторы [11, 12]. Они предлагают усложнить механизм вращения мишени таким образом, чтобы вращение осуществлялось вокруг двух параллельных осей. Тогда лазерный пучок будет описывать по поверхности мишени не окружность, а циклоиду, что повысит КПИ мишени. К сожалению, и данное решение имеет существенный недостаток (об этом чуть ниже), который не позволит обеспечить высокий КПИ мишени.

Самым простым решением поставленной задачи, конечно же, является создание однородного распределения лазерного излучения на всей поверхности неподвижной мишени. Такое равномерное распределение можно получить, применяя, например, растровые фокусирующие системы [13, 14]. Однако, как отмечалось выше, такая схема не может быть использована при напылении многокомпонентных соединений, поскольку в результате перегрева состав мишени будет со временем нарушаться.

Итак, можно констатировать, что существующие усовершенствования метода ИЛН направленные на повышение КПИ мишеней, или значительно усложняют напылительную установку, или не полностью решают существующую проблему. В настоящей работе мы предлагаем простое решение задачи достижения максимального использования материала мишени, способное увеличить ее КПИ практически до единицы.

### 3. Прямоугольное фокальное пятно, расположенное по радиусу мишени

Одним из возможных решений задачи повышения КПИ мишени является создание фокального пятна лазерного пучка в форме прямоугольника, расположенного по радиусу вращающейся мишени, причем фокальное пятно шириной  $L$  имеет длину не меньше ее радиуса (рис.3). Середина одной из сторон фокального пятна совпадает с центром вращения мишени  $O$ , а ось симметрии – с ее ра-

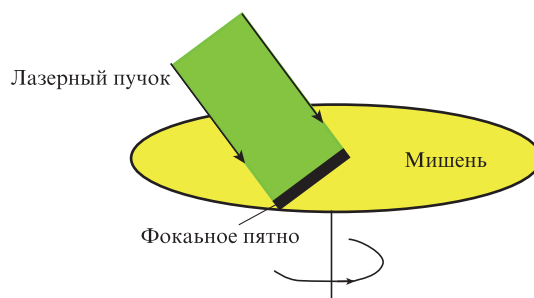


Рис.3. Геометрия метода ИЛН с расположенным по радиусу вращающейся мишени прямоугольным фокальным пятном.

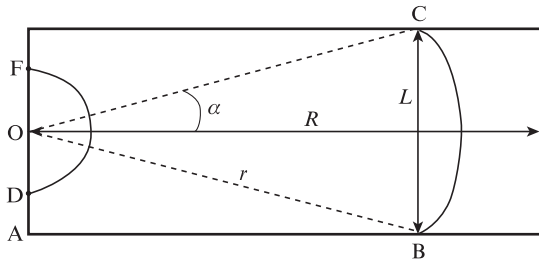


Рис.4. Схема расположенного по радиусу вращающейся мишени прямоугольного фокального пятна.

диусом (рис.4). На первый взгляд может показаться, что это простое и эффективное решение проблемы, ведь абляция материала мишени будет осуществляться со всей ее поверхности. Однако следует учесть, что количество испаренного с единицы поверхности материала пропорционально поступившей на нее энергии. Расположенные близко к центру мишени участки фокального пятна будут за один оборот мишени воздействовать на значительно меньшую площадь, чем более удаленные от ее центра. В результате этого материал мишени в центральной части будет расходоваться значительно быстрее, чем по краям.

Пусть на вращающуюся мишень в виде диска с радиусом  $R$  и толщиной  $h_0$  падает лазерный пучок, образуя фокальное пятно в форме расположенного по радиусу мишени прямоугольника шириной  $L$ . За время  $t_0$  мишень совершает  $N$  оборотов, и лазер в центре прожигает мишень насквозь. Какая же часть объема мишени при этом будет аблирована?

Как следует из рис.4, нужно рассматривать две области поверхности мишени – внутри окружности радиусом  $L/2$  и вне ее. Все точки внутри окружности радиусом  $OA = L/2$  при вращении мишени с постоянной угловой скоростью  $\omega$  будут подвергаться воздействию лазерного излучения в течение половины всего времени процесса ( $t_0/2$ ), т.к. для данных точек фокальное пятно лазера является полукругом. Можно сказать иначе. Внутри прямоугольного фокального пятна шириной  $L$  траекторией любой точки, расположенной на расстоянии не более  $L/2$  от центра вращения мишени (точка  $O$ ), будет полуокружность. Так, находящаяся на мишени точка  $D$  за один ее оборот будет подвергаться воздействию лазерного излучения до тех пор, пока она описывает полуокружность  $DF$  (рис.4). Точка  $B$ , расположенная от центра  $O$  на расстоянии, превышающем  $L/2$ , будет находиться под таким воздействием, пока не перейдет в точку  $C$ , описав дугу  $BC$ .

Обозначим через  $\sigma$  скорость испарения мишени (толщина, испаренная в единицу времени). Тогда из условия прожигания всей толщины мишени имеем

$$h_0 = \sigma t_0/2, \quad \sigma = 2h_0/t_0. \tag{1}$$

Точки на поверхности мишени, находящиеся вне окружности радиусом  $L/2$  на расстоянии  $r$  от центра, будут подвергаться воздействию лазерного излучения в течение времени  $\Delta t$  (один оборот мишени), и за  $N$  оборотов толщина мишени уменьшится на величину

$$h = \sigma \Delta t N = \sigma N |\overline{BC}|/v = \sigma N |\overline{BC}|/(\omega r), \tag{2}$$

где  $v$  – линейная скорость точки  $B$ ;  $|\overline{BC}| = 2ra = 2r \times \arcsin(L/2r)$  – длина дуги  $BC$ ;  $\omega = 2\pi N/t_0$ .

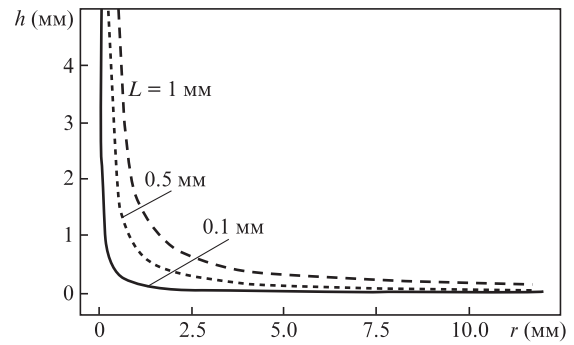


Рис.5. Зависимости толщины мишени  $h$  от радиуса  $r$  при ИЛН в геометрии с прямоугольным фокальным пятном.

Тогда при  $r \geq L/2$  уменьшение толщины мишени

$$h = \frac{2h_0 \arcsin(L/2r)}{\pi}. \tag{3}$$

Зависимости  $h(r)$  для различных  $L$  приведены на рис.5. Для точек с координатой  $0 < r \leq L/2$  имеем  $h = h_0$ .

Объем аблированного материала мишени определяется фигурой вращения, которая получается в результате вращения кривой  $h(r)$  вокруг оси  $h$ :

$$V = \pi h_1 R^2 + \pi \int_{h_1}^{h_2} \left[ \frac{L}{2 \sin(\pi h/2h_0)} \right]^2 dh, \tag{4}$$

где  $h_1 = [2h_0 \arcsin(L/2R)]/\pi$ ;  $h_2 = h_0$ . Отсюда

$$V = 2h_0 R^2 \arcsin\left(\frac{L}{2R}\right) + h_0 LR \left(1 - \frac{L^2}{4R^2}\right)^{1/2}. \tag{5}$$

Видно, что этот объем зависит от трех параметров: высоты мишени  $h_0$ , радиуса мишени  $R$  и ширины лазерного пучка  $L$ .

Поскольку КПИ материала мишени  $\eta = V/V_0$ , где  $V_0 = \pi h_0 R^2$  – объем мишени до начала процесса абляции, то, используя (5), получим

$$\eta = \left[ 2 \arcsin\left(\frac{L}{2R}\right) + LR^{-1} \left(1 - \frac{L^2}{4R^2}\right)^{1/2} \right] \frac{1}{\pi}. \tag{6}$$

Величина  $\eta$  зависит только от двух параметров –  $L$  и  $R$ . Зависимости  $\eta(R)$  для различных значений  $L$  приведены на рис.6. Как видно из рисунка, для одинаковых значений  $R$  объем аблированной части мишени тем больше, чем больше  $L$ .

Упростим полученное для КПИ материала мишени выражение, введя параметр  $k = L/R$ . Тогда уравнение (6) запишется в виде

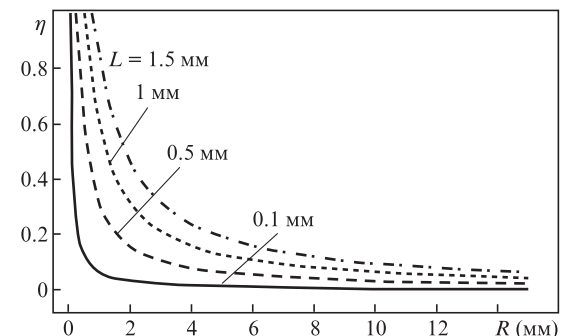


Рис.6. Зависимости КПИ мишени от ее радиуса при различных ширинах пятна лазерного пучка.

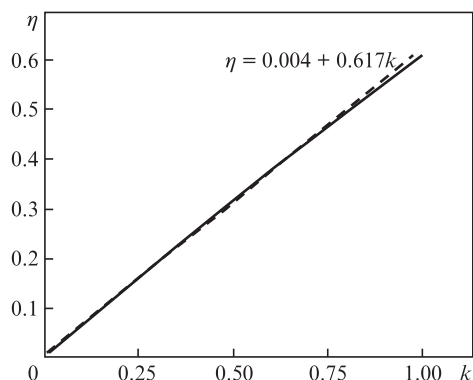


Рис.7. Зависимость КПИ мишени  $\eta$  от  $k$ . Штриховая линия – аппроксимирующая прямая.

$$\eta = [2\arcsin(k/2) + k(1 - k^2/4)^{1/2}]\pi^{-1}. \quad (7)$$

Напомним, что вычисления проводятся для  $R \geq L/2$ . При  $0 < R < L/2$  выполняется равенство  $\eta = 1$ .

На рис.7 приведена зависимость  $\eta(k)$ . Видно, что при  $k < 1$  она хорошо аппроксимируется прямой, уравнение которой можно записать в виде

$$\eta = 0.004 + 0.617k \approx 0.6k. \quad (8)$$

Таким образом, мы имеем с достаточно хорошим приближением очень простое выражение для КПИ. Очевидно, что для реализуемых в эксперименте значений параметров  $L$  и  $R$ , когда  $k \ll 1$ ,  $\eta$  не будет превышать 0.5.

Следует отметить, что способ, предложенный в патентах [11, 12], имеет аналогичный недостаток. Образующаяся на поверхности мишени в результате ее вращения вокруг двух параллельных осей траектория фокального пятна лазера в виде циклоиды также будет приводить к более интенсивному испарению материала центральной части мишени и низкому КПИ.

#### 4. Фокальное пятно в виде сектора, совпадающего с сектором поверхности вращающейся мишени

Проведенное выше рассмотрение поставленной задачи подсказывает способ ее кардинального решения. Для значений  $0 < R < L/2$ , когда фокальное пятно является полукругом, выполняется равенство  $\eta = 1$ . Но полукруг – это частный случай сектора, т. е. сектор имеет угол  $180^\circ$ .

На рис.8 приведена схема модифицированного метода ИЛН, которая позволяет просто и кардинально решить задачу достижения максимального использования материала мишени. Предлагаемая установка лазерного напыления отличается от обычной простой оптической системы, которая расположена вне напылительной камеры, состоит из двух линз и диафрагмы и обеспечивает формирование на поверхности мишени фокального пятна в виде сектора. Если фокальное пятно такой конфигурации будет совпадать с секторальным участком поверхности мишени и плотность энергии на любом участке фокального пятна будет одинакова, то при вращении мишени с постоянной угловой скоростью на каждый участок ее поверхности будет воздействовать лазерное излучение одинаковой

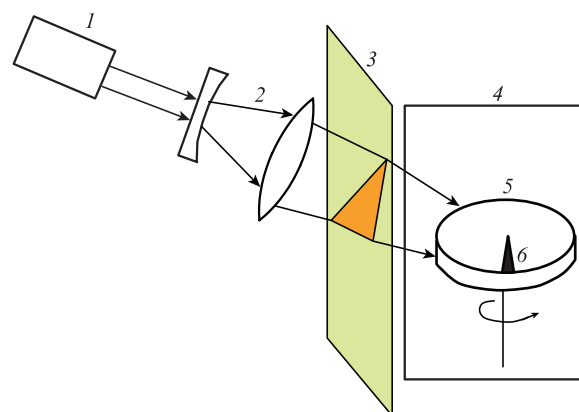


Рис.8. Геометрия метода ИЛН с фокальным пятном излучения лазера в виде сектора:

1 – лазер; 2 – оптическая система; 3 – диафрагма с отверстием; 4 – камера напыления; 5 – мишень; 6 – фокальное пятно лазера в виде сектора, совпадающего с сектором поверхности вращающейся мишени.

наковой мощности, что обеспечит равномерную абляцию материала мишени со всей поверхности.

Предлагаемое устройство использовалось для напыления пленок  $\text{CuO}$  и  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  с мишеней диаметром 10 мм с помощью импульсов излучения второй гармоники  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ -лазера с частотой следования 20 Гц. Скорость вращения подложек составляла 2 об./мин, мишени – 37 об./мин. Оптическая система создавала на мишени фокальное пятно излучения лазера в виде сектора с углом  $60^\circ$  и плотностью энергии 4 Дж/см<sup>2</sup>. Как до начала напыления, так и после пяти его циклов продолжительностью 45 мин вариация толщины различных участков мишени не превышала  $\pm 2\%$ . Можно утверждать, что предлагаемое устройство позволяет повысить КПИ материала мишени вплоть до  $\eta = 1$ .

#### 5. Заключение

Предложено, обосновано и экспериментально испытано новое устройство для осуществления лазерного напыления тонких пленок, позволяющее просто и кардинально решить задачу преодоления одного из основных недостатков метода ИЛН – низкого коэффициента использования материала мишени. Устройство состоит из двух линз и диафрагмы с отверстием и обеспечивает получение на поверхности мишени фокального пятна в виде сектора, чем достигается одинаковая скорость абляции материала вращающейся мишени со всей ее поверхности. Устройство расположено вне напылительной камеры, не требует никаких дополнительных механических перемещений, усложняющих традиционную установку ИЛН, и позволяет повысить КПИ мишени практически до единицы, что особенно важно для случаев напыления пленок материалов высокой стоимости (редкие и благородные металлы, сплавы на их основе, чистые оксиды, многокомпонентные соединения на их основе, изотопы и т. д.). Предложенное устройство интересно своей новизной, простотой и надежностью. С учетом того, что существующие решения или значительно усложняют напылительную установку, или не полностью решают задачу повышения КПИ мишеней, предлагаемое решение совместно с усовершенствованиями метода ИЛН [5], позволяющими получать тонкие пленки на теоретически бесконечных под-

ложках, может найти широкое применение как в научных лабораториях, так и в высокотехнологичном производстве.

1. Cheung J.T., in *Pulsed Laser Deposition of Thin Films* (New York: John Wiley & Sons Inc., 1994, p. 1).
2. Гапонов С.В., Лускин Б.М., Салашенко Н.Н. *Письма ЖЭТФ*, **33**, 533 (1981).
3. Кононенко Т.В., Конов В.И., Лубнин Е.Н., Даусингер Ф. *Квантовая электроника*, **33**, 189 (2003).
4. Kuzanyan A., Badalyan G., Karapetyan V., Gyulamiryan A., Gulian A. *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, **11**, 3852 (2001).
5. Кузанын А.С., Петросян В.А., Пилосян С.Х., Нестеров В.М. *Квантовая электроника*, **41** (3), 253 (2011).
6. Greer J.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **1835**, 21 (1993).
7. Kuzanyan A., Badalyan G., Nikoghosyan V., Harutyunyan S. *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, **11**, 3859 (2001).
8. Greer J.A., in *Pulsed Laser Deposition of Thin Films* (New York: John Wiley & Sons, Inc., 1994, p. 300).
9. Greer J.A., in *Pulsed Laser Deposition of Thin Films* (New York: John Wiley & Sons, Inc., 1994, p. 294).
10. Nagaishi R. *Formation of large surface area thin film by laser deposition method and device therefore*. JP83333674 (A), 12.17 (1996).
11. Takano S. *Film forming device by laser vapor deposition*. JP2305957 (A), 12.19 (1990).
12. Iwamoto D., Nagao M. *Laser ablation mechanism*. JP2006124821 (A), 05.18 (2006).
13. Грасюк А.З., Ефимков В.Ф., Смирнов В.Г. *ПТЭ*, № 1, 174 (1976).
14. Грасюк А.З., Зубарев И.Г., Ефимков В.Ф., Смирнов В.Г. *Квантовая электроника*, **42** (12), 1064 (2012).