

·成果简介·

# 我国第一台激光分子束外延设备研制成功

杨国桢

(中国科学院物理研究所光物理实验室, 中国科学院凝聚态物理中心, 北京 100080)

吕惠宾

(中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

[关键词] 激光分子束外延, 薄膜和超晶格, 原位实时监控

激光分子束外延是近几年才出现的一种新型高精密切膜技术<sup>[1,2]</sup>, 它集普通脉冲激光沉积 (PLD) 的特点和传统分子束外延 (MBE) 的超高真空精确控制原子尺度外延生长的原位实时监控为一体, 不仅可以生长通常的半导体超晶格材料, 尤其适于制备多元素、高熔点、复杂层状结构, 如超导体、光学晶体、铁电体、压电体、铁磁体以及有机高分子材料等薄膜, 同时还能进行其相应的激光与物质相互作用和成膜过程的物理、化学等方面的基础研究。因此, 激光分子束外延具有重要的学术意义和广泛的应用前景。

在国家自然科学基金委员会、中国科学院和国家超导中心的大力支持下, 由中国科学院物理研究所牵头与沈阳科学仪器研制中心合作, 成功研制出我国第一台激光分子束外延设备。经一年多的调试与试运转, 在探索激光分子束外延制膜基础技术与工艺条件的同时, 已制备出原子尺度外延生长的  $\text{SrTiO}_3$  (STO),  $\text{BaTiO}_3$  (BTO) 薄膜和 BTO/STO 超晶格<sup>[3-7]</sup>。对激光分子束外延生长的机理进行了理论分析与计算<sup>[8]</sup>, 并进行了  $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (YBCO) 超导薄膜、BTO/YBCO 多层膜以及无限层结构  $\text{BaCuO}_2$  (BCO) /  $\text{CaCuO}_2$  / (CCO) 超晶格等方面的研究与制备。1996年5月, 国家自然科学基金会委托王大珩院士和吴全德院士, 对该“八五”重点项目进行了中期评估, 认为“该项目取得了突破性的进展和重要成果”, “自行设计制作完成的激光分子束外延设备, 具有国际先进水平, 对发展我国的材料及相关器件研究将起到巨大的推动作用, 是我国仪器设备研制的典范”。

图1是我国第一台激光分子束外延设备的总体结构示意图。从中可看出, 激光分子束外延实质上就是用脉冲激光沉积取代了传统分子束外延核心的束源。换句话说, 激光分子束外延是用脉冲激光沉积的方法, 而工作在分子束外延的条件。因此, 在介绍激光分子束外延之前, 先对脉冲激光沉积做一简单介绍。

图2是脉冲激光沉积薄膜的示意图。当一定能量密度的脉冲激光入射到真空室内的靶面

国家自然科学基金重点项目。

本文于1997年5月19日收到。

时,靶材表面便被迅速加热、蒸发、并膨胀而形成含有靶材组分的等离子体羽辉,羽辉中物质与相对设置并被加热到一定温度的基片接触时,便在其表面上淀积成膜。目前普遍用于激光制膜的激光器是准分子激光器,其脉宽约为10—40 ns。也就是说,激光与靶表面作用的时间是很短的。一般认为,靶表面被加热的深度仅为百微米,而靶表面被激光作用处的瞬态温度可高达 $10^3$ — $10^4$ °C,因而即使靶材是多元素而熔点不同,也会被瞬态同时蒸发。因此,用脉冲激光淀积制备薄膜,具有膜的化学组分容易与靶的化学组分一致,沉积速度快、应用范围广等特点。据不完全统计,PLD方法制备的各类薄膜已超过200种,被公认为是制备薄膜的最好方法之一。但PLD方法制备薄膜的最大缺点是膜表面的颗粒问题,并无法实现原子尺度控制的层状外延生长。发展激光分子束外延技术的主要目的,就是要克服PLD方法的缺点。目前,激光分子束外延都被集中用于人们很感兴趣、而用其它方法均难以制备的氧化物薄膜的研制上。

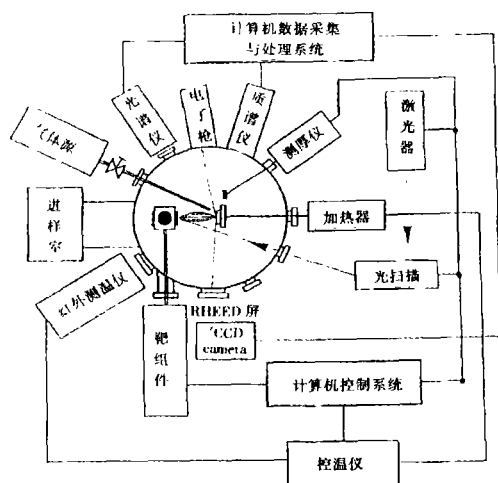


图1 激光分子束外延设备总体结构示意图

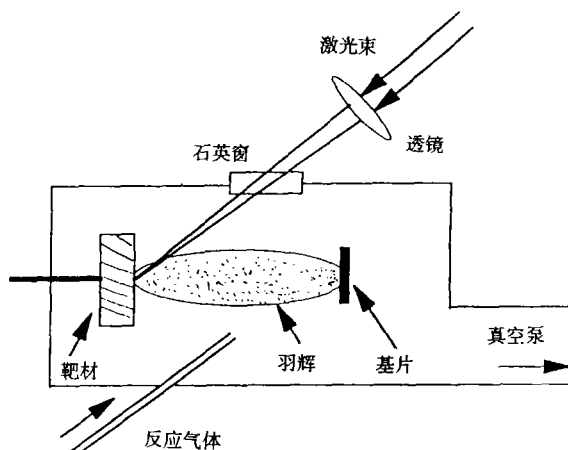


图2 脉冲激光淀积薄膜示意图

反射式高能电子衍射仪(RHEED)是控制原子尺度外延生长原位实时监控的有力工具。当高能电子枪发射直径为0.5—1 mm的电子束从1—3度掠射到外延基片表面后,通过基片表面晶格的衍射,将在电子枪对面的荧光屏上产生衍射条纹。衍射条纹的清晰度与基片表面的晶格结构和平整度直接相关,因此,RHEED的衍射条纹直接反映薄膜的结晶性和表面形貌。RHEED的衍射强度会随着薄膜表面的粗糙度发生变化,如图3所示,当薄膜表面是原子尺度光滑表面时(a),衍射强度最大;当表面外延1/4单胞层时(b),衍射强度减小到1/2;当表面外延1/2单胞层时(c),衍射强度变到最小;当表面外延3/4单胞层时(d),衍射强度又增大到1/2;当表面一单胞层外延结束时(e),衍射强度恢复到最大,依次类推。因此,RHEED的强度振荡不仅反映了薄膜的生长是否是层状外延生长,而且精确给出外延生长的单胞层数。也即RHEED的振荡周期可精确给出外延生长薄膜的厚度。所以一般把得到RHEED强度振荡周期的多少,作为是否层状二维生长的判据。实际上,RHEED的强度振荡的多少反映了控制层状外延生长的水平。

我们的激光分子束外延设备采用进样与外延两室结构，在真空条件下交换样品，不仅可保证外延室的本底真空度达到  $1 \times 10^{-8} \text{Pa}$ ，而且能使系统在高真空中连续运转；高能电子枪和四极质谱仪探头配有差分抽气，使它们的工作气压提高一个多数量级；建立活性气体装置，降低工作气压，提高薄膜的单晶性和质量；配备激光和靶的复合扫描装置，克服了激光制膜方向性强和羽辉成分分布不均匀的缺点，不仅能获得大面积薄膜厚度和化学组份比的一致性，而且提高了靶材的使用寿命；建立了高能电子衍射强度振荡的 CCD 数据采集，以及数据和图像处理计算机系统，不仅使用直观、方便，而且提高了测量准确性；激光的波长、能量、重复频率和能量分布的均匀性和稳定性是外延制膜的重要参数，采用 Lambda 公司 200 型准分子激光器，保证了外延生长参数的可靠性和稳定性；全部外延生长过程实现计算机控制自动化，解决了原子尺度外延生长过程工艺的精确度和重复性，为不同膜系、多层膜和超晶格结构的制备提供了极大的方便和可靠的保证；同时，把四极质谱探头设计成具有探测中性粒子和带电离子的双重功能，配有伸缩调节装置和取样小孔，探头可伸进羽辉不同空间，进行羽辉成分分析；在外延室上并装有两个直径为 100 mm 的光学窗口，可进行发射、吸收等方面的光谱测量与分析工作。这些均为进行制膜过程的物理、化学等基础研究提供了有利条件。

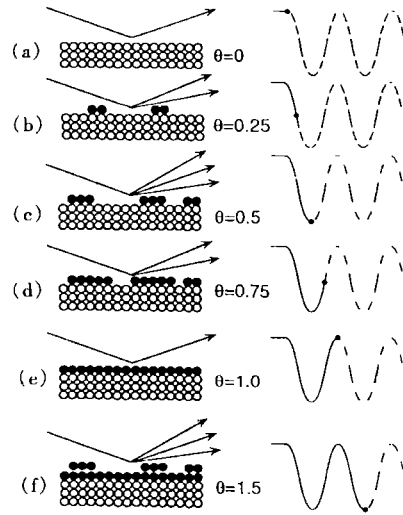
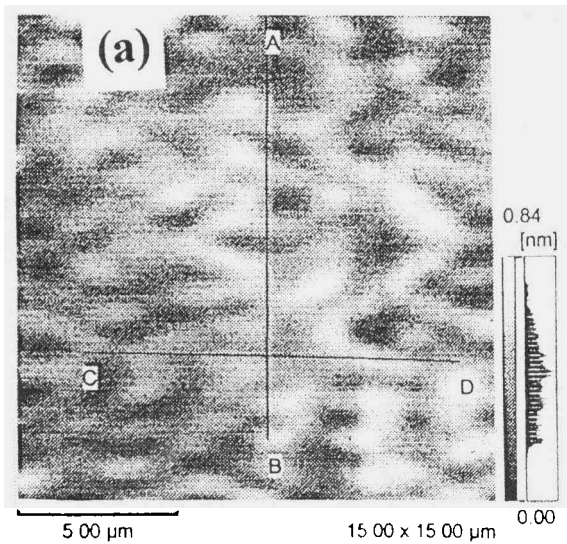


图 3 RHEED 强度振荡示意图



(b)

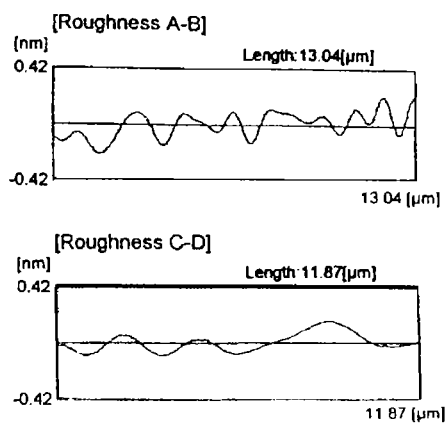


图 4 BTO 薄膜 AFM 二维形貌图

由于我们指导思想明确，技术措施合理，所以研制的激光分子束外延设备很快进入试运转过程。在 STO 和 BTO 的外延过程中，都能得到 30—50 个连续周期的 RHEED 强度振荡。但

一般情况下,无论是传统的分子束外延,还是激光分子束外延,RHEED的强度振荡总是随着振荡周期的增加,振荡幅度逐渐减小,直到振荡消逝。也就是说,随着外延膜厚的增加,薄膜表面的粗糙度也逐渐变差。最近,我们采用间歇式外延,首次在STO同质外延和BTO异质外延中均获得上千周期振荡幅度不衰减的RHEED振荡。而且随着膜厚的增加,振荡幅度不仅不衰减,反而略有增加<sup>[5,6]</sup>,说明外延生长薄膜的平整度越来越好。在此基础上,我们也成功地制备了BTO/STO超晶格材料<sup>[7]</sup>。

图4(a)所示是用原子力显微镜(AFM)测得BTO外延薄膜表面的二维形貌图,图4(b)对应于图4(a)划线的表面粗糙度。图4(a)所示 $15 \times 15 \mu\text{m}^2$ 内薄膜表面的均方根粗糙度是 $1 \text{ \AA}$ 。AFM的测量结果充分说明我们已外延出原子尺度光滑表面的外延薄膜。

目前,我们在探索激光分子束外延制膜基础技术与工艺的同时,进一步改进与完善这套激光分子束外延设备,为今后长期使用激光分子束外延技术制备新型的薄膜和超晶格取得经验,为发展我国的激光分子束外延设备和技术作出我们应有的贡献。

### 参 考 文 献

- [1] Kanai M, Kawai T, Kawai S. Atomic layer and unit cell layer growth of (Ca, Sr)  $\text{CuO}_2$  thin film by laser molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 1991, **58**: 771.
- [2] Koinuma H, Yoshimoto M. Controlled formation of oxide materials by laser molecular beam epitaxy. *Appl. Surf. Sci.*, 1994, **75**: 308.
- [3] Wang H S, Ma K, Cui D F, et al. Layer-by-layer growth of  $\text{BaTiO}_3$  thin films with extremely smooth surface by laser molecular beam epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 1996, **174**: 67.
- [4] Cui D F, Wang H S, Chen Z H, et al. Crystallographic and microstructural studies of  $\text{BaTiO}_3$  thin films grown by laser molecular beam epitaxy. *J. Vacu. Sci. Tech.*, 1997, **15**: 275.
- [5] Yang G Z, Lu H B, Wang H S, et al. Unit-cell by unit-cell epitaxial growth of  $\text{SrTiO}_3$  and  $\text{BaTiO}_3$  films by laser molecular beam epitaxy. *Chin. Phys. Lett.*, 1997, **6**: 478.
- [6] Yang G Z, Lu H B, Cui D F, et al. Two-dimensional growth and structural characterization of oxide ceramic thin films grown by laser molecular beam epitaxy. International conference on thin film physics and applications, Shanghai, China, April 15—17, 1997.
- [7] Yang G Z, Lu H B, Zhu X D, et al. RHEED-controlled unit-cell by unit-cell layer-growth of  $\text{SrTiO}_3$  and  $\text{BaTiO}_3$  thin films by Laser MBE. 13th International Conference on Laser Spectroscopy, Hangzhou, China, June 3—7, 1997.
- [8] Jin K J, Pan S H, Yang G Z, et al. A Monte Carlo study of thin-film growth by laser-MBE. *Phys. Lett. A*, 1996, **220**: 247.

## THE FIRST LASER MOLECULAR BEAM EPITAXY APPARATUS IN CHINA

Yang Guozhen

(*Institute of Physics and Center for Condensed Matter Physics, CAS, Beijing 100080*)

Lu Huibin

(*Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, CAS, Beijing 100080*)

**Key words** laser molecular beam epitaxy, thin film and superlattice, in situ real-time control