

溅射原子角分布与靶点表面形貌的 关联研究*

王震遐 潘冀生 陶振兰 章骥平

中国科学院上海原子核研究所, 上海, 201800

张慧明 张伟坪 卢兆伦

杭州大学物理系, 杭州, 310028

1990年4月24日收到; 1990年5月21日收到修改稿

27 keV 的 Ar^+ 离子垂直轰击处于不同温度的 Cd 靶, 用捕获膜技术和 Rutherford 背散射谱仪 (RBS) 测定溅射原子角分布, 并对所有样品的靶点形貌进行扫描电子显微镜 (SEM) 观察. 结果发现, 所有的角分布都呈 over-cosine 形状, 但是在极角为 0° 处实验值与 cosine 值的偏离 Δ , 是不同的. 在靶温度为 $150^\circ C$ 时的偏离 Δ_T 小于在室温时的偏离 Δ_R , 亦即 $\Delta_T < \Delta_R$. 提出一个简单的模型对这种溅射角分布形状进行了分析.

PACC: 7920N; 6820

一、引言

从固体表面发射的溅射原子的角分布, 可以提供有关近表面区反冲原子级联碰撞的详细知识. 线性级联碰撞理论预言, 大多数溅射原子是低能的, 级联碰撞产生的反冲原子如果具有超过表面势垒的足够能量, 则可以从表面发射^[1]. 在这种理论中, 假设在级联碰撞过程中反冲原子的运动是随机的, 因此溅射原子角分布是 cosine 关系. 但是有一种对级联碰撞理论的不同解释认为, 大多数溅射原子在发射之前只遭遇到一次碰撞^[2], 因而他们都来源于靶表面的最外原子层. 在 Falcone 和 Sigmund 的理论中, 也考虑了在近表面能量沉积的深度关系, 此时得到 over-cosine 角分布, 即在小极角处原子发射较 cosine 分布增强, 这是由于处在较深层的反冲原子发射造成的.

Yamamura 等^[3]研究了束流轰击引起的表面形貌对溅射原子角分布的影响, 他们发现表面原子的平均晶格常数因表面粗糙而变大, 这种表面效应将对溅射原子角分布的 over-cosine 程度产生影响. 另外, 用 ACAT 程序模拟发现离子轰击引起的表面粗糙度减少了 over-cosine 分布的程度, 因为粗糙的表面较之未辐照的平滑表面增大了面积. 在 10 年前, 只有少数实验研究了一定表面结构情况下的溅射原子角分布, Rödelsperger 等人^[4]测量过 Au 和 Cu 等元素靶的溅射原子角分布, 并讨论了表面形貌对角分布的影

* 国家自然科学基金资助的课题.

响。Littmark 等人^[5]计算了表面结构对溅射的影响。他们描绘了用于预言由溅射过程引起溅射原子角分布改变的模型方法的发展。

过去数年之间,少数作者直接测量了表面形貌对溅射原子角分布的影响,Nagai 等人^[6]报道过离子溅射沉积 Ni-Fe 膜厚度角分布的结果。实验表明 Ni 和 Fe 原子的角分布随轰击离子入射角的增加而变化。用一个简单的模型分析发现,这种现象是由于表面形貌和斜入射离子之间相互作用引起的。最近,王震遐及其同事^[7]给出了辐照 Fe-W (25 wt%) 合金靶的表面形貌对各组分元素溅射原子角分布的影响。他们发现,Fe 原子角分布 (over-cosine) 和 W 原子角分布 (cosine-like) 之间的差别与他们在腐蚀坑中 (Fe 富集) 和基体面积上 (W 富集) 的成份差异有关。这表明,溅射表面的微观形貌,可能是引起各成分元素角分布变化的一个重要原因。

为了获得离子轰击引起表面形貌对角分布形状影响的更多了解,对处于不同温度情况下的 Cd 靶进行了溅射原子角分布测量。与此同时,对不同温度下的溅射样品靶点都作了扫描电子显微镜观察,并对角分布形状和表面形貌之间的关联进行了讨论。

二、实验与结果

本实验的装置与文献 [8] 相似。Cd 样品的纯度为 99.99%, 温度分别控制在 25°C 和 150°C。当 Cd 升温到 150°C 时,只相当于其熔点温度的 47%, 因此在溅射原子角分布测量中由于蒸发造成的增强可以忽略不计。溅射原子用高纯 Al 箔收集, Al 箔被固定在以靶点为中心半径为 3.0 cm 的柱体支架上。从带有 90° 偏转磁铁的同位素分离器引出的 27 keV 的 Ar⁺ 离子用来进行溅射,束流径限流孔打到样品上,靶点直径为 3 mm。平均轰击 Ar⁺ 离子流强约为 0.7 μA, 总剂量对两个样品均为 1.4 × 10¹⁹ ion/cm²。收集在捕获 Al 箔上的溅射原子数用 RBS 分析,使用的 He⁺ 离子能量为 2.0 MeV。背散射 He⁺ 离子用置于 170° 处的硅面垒型探测器测量,其立体角为 1.20 msr, 收集在 Al 箔上相应于某一发射角 θ 的 Cd 原子绝对数可以写成

$$N_i(\theta) = A / (n\bar{\sigma}\Omega_D), \quad (1)$$

式中 A 为在 RBS 相应峰下计数的总和, n 和 $\bar{\sigma}$ 分别为 He⁺ 离子总数和 Rutherford 微分散射截面在探测张角内的平均值, Ω_D 为探测立体角。

图 1 给出在不同温度条件下样品的溅射原子角分布。在极角坐标中给出 Cd 原子的相对溅射产额与相对于样品表面法线的发射角 θ 的函数关系。θ = 0° 的极轴定位在垂直入射的轰击离子束中心线上。θ = 90° 时,极轴与样品表面地平线重合。但是在 θ ≈ 0° 时,没有发射原子数据,因为这一部分捕获 Al 箔必须切除以便让入射的 Ar⁺ 离子通过。在图 1 中还给 cosine 分布曲线,以便与测量值进行比较。结果表明,溅射原子在较小的发射角范围内 (θ ≤ 45°) 择优发射。但是,对样品处在 150°C 较高温度而言,其溅射原子角分布的形状,较之样品处在室温 25°C 的角分布接近于 cosine 型分布。换言之,如果假设在 θ = 0° 极轴上实验测定的相对微分产额数值与 cosine 分布的偏离为 Δ, 则在 150°C 时的偏离 Δ_T 比室温时的偏离 Δ_R 小, 即 Δ_T < Δ_R, 这从图 1 的内插图可以看出。

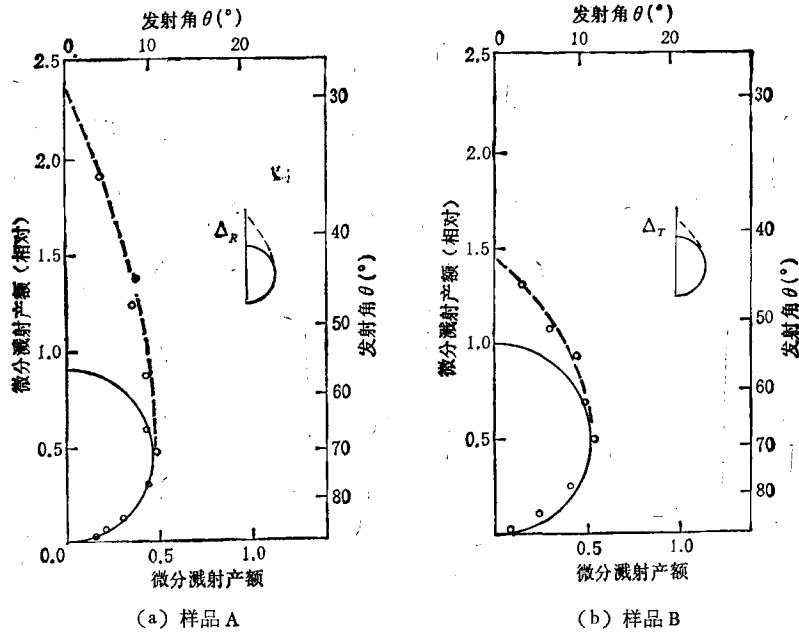


图 1 27 keV 的 Ar^+ 离子垂直轰击不同温度样品时的溅射原子角分布 (a) 和 (b) 分别表示同一批样品处在室温和处在 150°C 条件下的结果;图中也给出供参考用的 cosine 曲线;内插图表示在 $\theta=0^\circ$ 处实验值与 cosine 值的偏离 Δ

为了理解表面形貌对溅射原子角分布形状的作用,对每一个溅射样品都用 S-570 型扫描电子显微镜 (SEM) 在相同条件下对轰击表面进行了检查。对于同一批制备的样品 A (在 150°C 情况下溅射) 和样品 B (在室温情况下溅射) 的表面形貌照片见图 2 (a) 和 (b)。从图 2 可以看出,当样品的温度从 25°C 上升到 150°C 时,溅射表面构形趋于比较平坦,当样品处在室温 (25°C) 时,溅射表面显现出具有较深浸蚀坑的典型峰房形结构,只间杂着少许空隙 (较平坦区),而当样品温度为 150°C 时,在其它条件相同情况下,溅射表面却形成了大小不等的类石块状颗粒,周围具有深浅不等的浸蚀沟并有一些空隙。平均而言,峰房状蚀坑上部具有大约 5° 的半锥角 α 。多面体类石块颗粒与样品表面法线之间

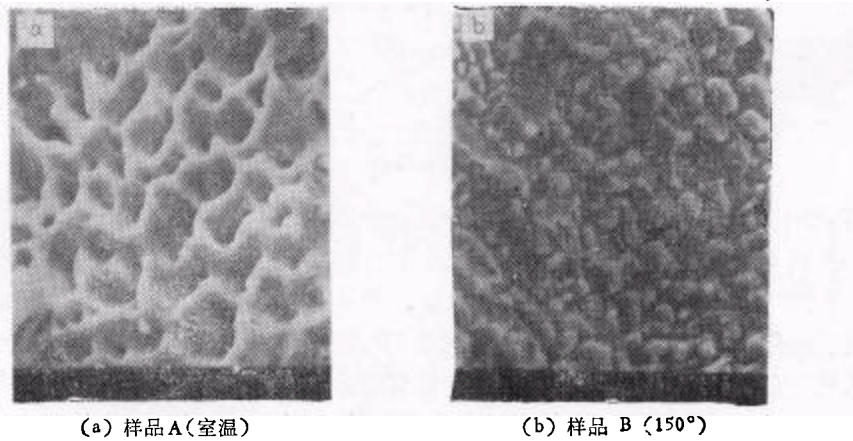


图 2 轰击表面的 SEM 照片

的夹角 α_p 却是很不相同的, 其最大值估计约为 45° 。由图 2 (a) 和 (b) 可以给出如图 3(a) 和 (b) 表示的典型剖面。

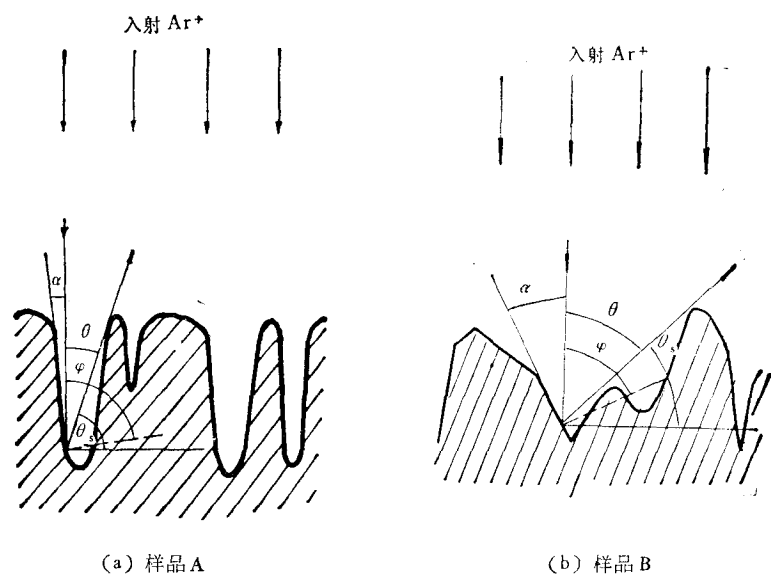


图 3 轰击表面模型截面图 (a) 和 (b) 分别对应于 Cd 样品处在室温和 150°C 条件下 Ar^+ 离子溅射形成的表面形貌

三、讨 论

详细讨论表面形貌的产生和发展已超出本文范围, 但是在升高靶温度进行溅射时将阻止表面无序的产生以及形态的改变, 因为温度的升高可能增强表面原子的徙动和缺陷的湮没, 已知环境缺陷的应力场能够降低原子的表面结合能从而提高溅射产额, 这种溅射产额的变化正是引起表面形貌重要改变的原因。另一方面, 当被轰击样品的表面形貌一旦形成, 其几何花样势必对溅射原子角分布产生影响。

为了讨论溅射样品表面形貌和溅射原子角分布之间的联系, 假设溅射微分产额 $Y(\theta)$ 可以写成

$$Y(\theta) = Y_1(\theta) + Y_2(\theta) + Y_3(\theta), \quad (2)$$

式中 $Y_1(\theta)$ 为从空隙区发射的溅射原子产额, $Y_2(\theta)$ 为从浸蚀坑底部发射的溅射原子产额, 而 $Y_3(\theta)$ 则是从蜂房形浸蚀坑侧面或类石块颗粒多面体平面发射的溅射原子产额。 $Y_1(\theta)$ 和 $Y_2(\theta)$ 相当于 Ar^+ 离子垂直入射的产额, 而 $Y_3(\theta)$ 则对应于斜入射时溅射原子的产额。因此, (2) 式可用下述关系代替:

$$Y(\theta) = Y_N(\theta) + Y_o(\theta) \quad (2')$$

式中 $Y_N(\theta)$ 和 $Y_o(\theta)$ 分别为垂直入射和斜入射离子的溅射微分产额。由此可见, 不管溅射样品的表面形貌如何变化, 原则上讲, 其溅射原子角分布形状都可用 (2') 式加以描述。

根据溅射级联理论, 对无定形靶的溅射原子角分布是类 cosine 型的, 但此理论在掠

角入射情况下不能应用. Roosendaal-Sanders 级联理论(简称 R-S 理论)^[9]考虑了级联碰撞反冲原子空间分布的各向异性,可以对包括掠角(α)入射在内所有离子入射角情况进行讨论. R-S 理论的计算表明,最大发射方向相对于靶表面法线移动一个角度 θ° ,即角分布中微分产额的极大值 $Y(\theta)_{\max}$ 不是在 $\theta = 0^\circ$ 的极轴上,而是向入射束流方向移动一个 θ° 角,计算结果表明, $\theta^\circ \approx 5^\circ$.但是,在掠角入射情况下,实验观察到的移动可以比理论的预期值大.例如,根据 Dodonov 等人^[10]的实验结果,在入射掠角 $\alpha \approx 10^\circ$ 时 θ° 角大于 10° .

另外, Marsh 等人^[11]给出一个关于溅射产额 Y 与轰击离子入射角 φ 的关系式

$$Y(\varphi)/Y(\varphi = 0) = [1 + 6.66(\varphi/90)^2] \cos \varphi, \quad (3)$$

式中 φ 为相对于表面法线量度的入射角,与一般所说的“掠角” α 有如下关系:

$$\varphi = (\pi/2) - \alpha.$$

到目前为止,所有的实验研究表明,达到极大产额时的入射角 φ_{opt} 介于 60° 到 80° 之间.

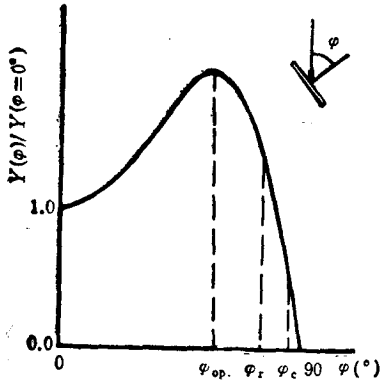


图4 相对溅射产额 $Y(\varphi)/Y(\varphi = 0^\circ)$ 随 Ar^+ 离子入射角 φ 的变化

当入射角 $\varphi > \varphi_{opt}$ 时产额迅速减小,在 $\varphi \approx \varphi_c$ 时降到零值.一般认为,产额在 φ 从 φ_{opt} 到 φ_c 范围内的变化,是由于入射离子反射系数随着入射方向接近掠角而迅速增大所致.有人认为全反射达到时的入射角 φ_r 应当小于 φ_c ,因此在溅射产额 $Y(\varphi)$ 从极大降到零值时,入射角 φ 须经过几个临界值变化,他们的次序应为

$$\varphi_{opt} < \varphi_r < \varphi_c < \pi/2,$$

如图4所示.

结合我们实验中观察到的溅射样品表面形貌,实际上,轰击的 Ar^+ 离子在溅射表面的蜂房状蚀坑底部和空隙处是垂直入射的,而在蜂房状

蚀坑侧面以及在类石块状多面体表面上则为倾斜入射.在溅射原子从蜂房状蚀坑侧面发射情况下,其溅射 Ar^+ 离子的入射,具有 $\alpha \approx 5^\circ$ 的掠角(见图3(a)),即

$$\varphi = (\pi/2) - \alpha \approx 85^\circ, \text{ 故 } \varphi \sim \varphi_r.$$

此时入射的 Ar^+ 离子接近全反射的条件.但是,当溅射原子从类石块平面区发射时,在大多数情况下, $\varphi < \varphi_r$,尚未达到全反射情况.

另外,根据 Folcone 和 Sigmund 理论^[1], $Y_1(\theta)$ 和 $Y_2(\theta)$ 为 cosine 型分布.但是 $Y_3(\theta)$ 则与之不同,是倾斜入射时的微分溅射产额.从 Dodonov 等人^[10]的实验结果来看,此时溅射原子角分布比级联理论所预言的要复杂得多.不但最大产额移动角 θ° 要大于 R-S 理论的计算值($\sim 5^\circ$),而且 θ° 还随离子入射角 φ 的减小而增大.

根据在图2(a)和(b)中所给出的两种溅射样品微形貌的特征,复制了它们的典型剖面图,并给出相应的 Ar^+ 离子入射角 φ ,掠射角 α ,屏蔽角 θ ,以及溅射原子发射角 θ 等几何参数之间的关系,如图3(a)和(b)所示.

把图3作为分析模型,并综合上述的有关讨论,可以获得如下结果:

1. 从空隙区发射的溅射原子角分布,具有类 cosine 形状.

2. 从蜂房状浸蚀坑上部侧面发射的溅射原子数, 可以忽略不计。因为此时的 Ar^+ 离子入射角 φ 近于全反射角 φ_r , $\varphi \approx \varphi_r$ 。

3. 假设浸蚀坑底部一部分较平坦, 由此处发射的溅射原子角分布是类 cosine 形状, 另一部分具有不同入射角 φ 。但是这些溅射原子都必然要受到坑壁的屏蔽并可能发生再溅射现象。因此, 实际测量到的溅射原子角分布形状, 可以变成类高斯型分布。过去曾有不少关于元素靶的溅射实验获得了类高斯型的角分布, 但是几乎都没有从表面形貌学角度对之加以分析。我们认为, 表面浸蚀坑的屏蔽和再溅射作用可能是产生类高斯型角分布的重要原因。因此, 浸蚀坑的面密度 N_0 及其形状和深度诸参数都会对具体角分布的形状产生影响。

4. 当考虑到微分溅射产额 $Y(\theta)$ 与离子入射 φ 的关系时, 从类石块多面体平面上产生的溅射原子, 虽然在 $0^\circ < \theta < \theta_0$ 角度范围可以不受屏蔽地发射, 但是, 由于在各个多面体平面上离子入射角各不相同, 角分布形状也各不相同, 因而在 $0^\circ - \theta_0$ 角度范围内被截取的一部分角分布形状是比较复杂的。如果屏蔽角度很小, 即类石块多面体颗粒面密度较小, 实际上这些溅射原子几乎在 $0^\circ - 90^\circ$ 范围内都可自由发射, 如此产生的角分布形状可能是类 cosine 型。

5. 在室温条件下, 由于蜂房状浸蚀坑的面密度大, 且从坑侧面上部发射的溅射原子可以忽略不计, 因此主要的溅射原子来源于空隙部位以及蚀坑底部。因此实际的角分布应当是类高斯形状, 这一推断与实验结果符合。

6. 当样品处在较高温度 (150°C) 时, 由于浸蚀坑面密度相对减小和屏蔽角 θ_0 的可变和减小, 这样就使角分布在 $0^\circ - 45^\circ$ 范围内相对减弱, 而在大角度范围内相应有所增强。因此, 虽然实验测到的角分布仍为类高斯形状, 但是高度却有较大的减小。这也可以从图 1(a) 和 (b) 的比较中清楚的看出

$$\Delta_T < \Delta_R.$$

可见模型分析与实验结果符合得很好。

四、结 论

用 27 keV 的 Ar^+ 离子轰击处于不同温度情况下的 Cd 元素样品, 所获得的溅射原子角分布与靶点表面形貌互相关联的数据虽然是初步的, 但却是有兴趣结果, 可由此给出下述结论:

1. 通过在离子轰击过程中控制样品温度, 可以使溅射表面形貌发生充分的变化。从技术上看, 控温与轰击相结合的操作, 可能成为材料表面改性的有用新手段。

2. 离子轰击表面形貌与溅射原子角分布相关联的研究表明, 靶点表面微形貌对溅射原子角分布形状的形成甚为重要。当然这里并不排斥在碰撞级联范围内近表面反冲原子分布的贡献。

对邹志宜及其同事在溅射实验中所给予的有效帮助, 以及 4 MV van de Graaff 加速器运行组成员的协助深表谢忱。

- [1] G. Falcone and P. Sigmund, *Appl. Phys.*, **25**(1981), 307.
- [2] G. Falcone, *Phys. Rev.*, **B33**(1986), 5054.
- [3] Y. Yamamura, C. Mössner and H. Oechsner, *Rad. Eff.*, **105**(1987), 31 .
- [4] K. Rödelberger *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth.*, **132**(1976), 355.
- [5] U. Littmark, W. O. Hofer, *J. Mater. Sci.*, **13**(1978), 2577.
- [6] Y. Nagai and T. Toshima, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A4**(2)(1987), 179.
- [7] Wang Zhenxia *et al.*, *Rad. Eff. and Def. in Solid*, **108**(1989), 351.
- [8] 王震遐等, *物理学报*, **39**(1990), 501.
- [9] H. E. Rosendaal and J. B. Sanders, *Rad. Eff.*, **52**(1980), 137.
- [10] A. I. Dodonov *et al.*, *Rad. Eff.*, **107**(1988), 15.
- [11] T. Marsh and R. Collins, *Rad. Eff.*, **99**(1986), 171.

A RESEARCH OF THE CORRELATION BETWEEN SURFACE TOPOGRAPHY AND ANGULAR DISTRIBUTION OF SPUTTERED ATOMS

WANG ZHEN-XIA PAN JI-SHENG TAO ZHEN-LAN ZHANG JI-PING

Institute of Nuclear Research, Academia Sinica, Shanghai, 201800

ZHANG HUI-MING ZHANG WEI-PING LU ZHAO-LUN

Department of Physics, Hangzhou University, Hangzhou, 310028

(Received 24 April 1990; revised manuscript received 21 May 1990)

ABSTRACT

The angular distributions of sputtered atoms of cadmium have been measured with 27 keV Ar⁺ ion bombardment at normal incidence with different target temperature by using collector technique and RBS analysis. After the sputtering experiment the surface structures have been observed using scanning electron microscope. For all samples the angular distributions are over-cosine. However, the values of the deviation Δ from the cosine distribution at the axis of polar angle of 0° is not all the same. The deviation Δ_T at the target temperature of 150°C is smaller than that at room temperature, ie. $\Delta_T < \Delta_R$. A simple model is proposed to explain the formation of pattern of angular distribution.

PACC: 7920N; 6820