

离子引出收集的沉积与溅射研究*

朱红莲 王德武

(清华大学工程物理系, 北京 100084)

(2001 年 6 月 27 日收到, 2001 年 9 月 11 日收到修改稿)

研究离子引发收集过程中的沉积和溅射特性, 给出了离子沉积和溅射的数理模型, 其中重点分析了结合能、捕获概率和溅射系数这几个参数的物理意义和计算公式, 给出了收集板总收集量和损失量, 并且用计算机模拟了收集板的收集, 给出不同的离子入射能量下入射离子元素沉积厚度和不同元素靶对各入射离子溅射特性的影响, 得出以下的结论: 随着离子沉积在收集板表面涂层厚度的增加, 溅射率也增加; 离子的引出电压不是越高越好, 轻质量离子的总收集率比较小; 入射离子沉积和溅射特性和收集板靶原子质量有关, 质量轻的金属材料作收集板, 有利于提高离子的收集率.

关键词: 溅射, 捕获概率, 溅射概率

PACC: 5265, 8115C

1. 引 言

离子引出收集问题是 AVLIS (Atomic Vapor Laser Isotope Separation) 系统的一个重要课题. 激光等离子体的引出收集关系到整个 AVLIS 系统的收集效率. 离子引出之后不一定会被收集板全部收集, 因此不仅要考虑引出时间和引出率, 而收集率也是一个至关重要的参数^[1].

影响收集率的主要因素是引出的离子在收集板上的溅射, 当高能离子(通常是由电场加速的正离子)撞击收集板的固体表面时, 与固体表面的原子进行能量交换, 如图 1 所示, 会产生各种现象, 如入射离子散射和返回, 表面溅射和级联溅射离子的返回, 溅射原子的发射, 电子发射, 表面吸附原子和分子的发射等^[2]. 入射离子在固体表面产生弹性或非弹性散射, 这种散射是入射离子的散射. 当入射离子与固体表面层原子相互作用时, 还会引起次级离子发射或中性原子发射. 这为表面溅射. 高能离子进入固体表面通过能量交换, 因失去动能而被固体靶捕获^[3]. 当靶原子得到的动能超过其晶格的势垒时, 它会偏离格点移动, 对其靠近的基底原子接连不断的反复碰撞, 形成级联过程. 这种级联碰撞到达表面时, 移位原子对表面具有反方向运动速度. 若其动能超过

原子结合能, 则向真空发射. 这为级联碰撞引起的溅射. 由于发生溅射, 特别是中性原子的发射, 将会使收集率下降.

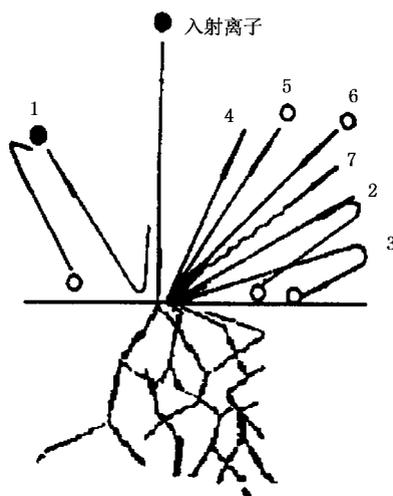


图 1 伴随粒子碰撞的各种现象

1. 入射离子的散射和返回
2. 表面溅射离子的返回
3. 级联溅射离子的返回
4. 溅射原子的发射
5. 电子发射
6. 表面吸附原子和分子的发射
7. $h\nu$ 光子能量

早在 20 世纪初期就开始对离子溅射问题进行了理论和实验研究. 特别近几十年, 受到薄膜制造技

* 国家“九五”科技攻关项目(批准号 96-A18-01-02)资助的课题.

术、表面处理技术、等离子体技术等发展的影响,其重要性又被重新认识^[12]. 本文针对激光等离子体离子引出收集过程中的沉积和溅射问题进行研究,其中,对离子沉积溅射机理和数学模型进行了分析,并通过计算对离子溅射概率和收集率与有关参数的变化特性进行了比较分析,给出有益的结果.

2. 离子沉积与溅射的数理模型

2.1. 结合能 E_b

离子从瞬时等离子体中被电场引出沉积在收集板上. 当入射离子靠近金属收集板表面时便与靶原子发生库仑作用,沉积结合起来形成晶体. 这个过程释放出的能量称为结合能 E_b .

$$E_b = E_N - E_0, \quad (1)$$

其中 E_N 为组成晶体的离子彼此自由时的能量, E_0 为晶体能量. 单质晶体的结合能可通过理论计算或实验测量得到^[4-6]. 不同元素的单质晶体的结合能是不一样的. 随着入射离子在收集板靶表面沉积量的增加结合能是发生变化的. 文献[5]中给出 Cs^+ 入射 W 靶表面的结合能公式为 $E_b = 3.27 - 2.78\theta$ (eV), 其最大值是 3.37 eV, 而 W 的结合能 (8.8 eV) 大于这个值. 因此这个公式不能表达 W 靶与入射离子的结合能关系. 靶板的结合能随入射离子沉积量 (即厚度) 的增加而不断改变, 当沉积厚度为一个原子层厚度时, 对入射离子的结合已不再是靶原子, 而是入射离子本身原子构成的表面, 因此, 我们给出如下的结论能 E_b 表达式:

$$E_b = \begin{cases} (1 - \theta)E_{bt} + \theta E_{bc} & 0 \leq \theta \leq 1, \\ E_{bc} & \theta \geq 1, \end{cases} \quad (2)$$

其中 E_{bt} , E_{bc} 分别为靶材料和入射离子的原子结合能. 原子层厚度 θ 小于 1 是一个平均的概念, 随着入射离子形成的涂层厚度增加, 入射离子与靶原子的结合能减小, 而与入射离子的原子间的结合能增加. 当涂层的厚度达到 1 个原子层后, 收集板的结合能就相当于被收集离子金属的结合能, 即当 $\theta > 1$ 时 $E_b = E_{bc}$.

2.2. 捕获概率 P_{trap}

入射离子撞击收集板靶表面, 一部分被靶捕获沉积在表面上, 一部分被散射出去. 被捕获的离子数占总的入射离子数的百分数称为捕获概率. 离子从

表面散射后仍具有一定的能量. 一般认为其能量小于 $0.2E_c$ (E_c 离子入射初始能), 如果这个能量小于结合能 E_b , 入射离子就被捕获, 而大于时部分将被表面散射. 关于离子的捕获概率, 不少学者进行了研究, 我们根据 Hurkmans 等人^[8]给出的捕获概率 P_{trap} 计算公式, 计算了 Cu^+ 打在 W 靶上的捕获概率, 其结果为图 3(a) 曲线 1. Van Amersfoort 等人在文献[7]中给出计算公式为

$$P_{\text{trap}}(E) = \begin{cases} 1 & E \leq 5E_b, \\ 5\left(\frac{E_b}{E}\right) & E > 5E_b. \end{cases} \quad (3)$$

用(3)式计算 Cu^+ 打在 W 靶上的捕获概率与引出能量 E_c 的关系曲线为图 3(a) 中曲线 3. (3) 式仅给出捕获概率与结合能的关系, 并没有反映出入射离子和靶原子间的质量关系. 因为轻质量离子在相同的初始能量 E_c 下其散射概率要大于较重的离子. 因此应引入散射系数 $K^{[9]}$,

$$K = \frac{M_1 \cos \theta_s}{M_1 + M_2} + \left[\left(\frac{M_1 \cos \theta_s}{M_1 + M_2} \right)^2 + \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \right]^{1/2}, \quad (4)$$

若 $\theta_s \approx \pi$ 时, $K^2 \approx 1 - 2(1 - \cos \theta_s)M_1 M_2 / (M_1 + M_2)^2$. 其中 M_1 , M_2 分别为入射离子及靶原子质量, θ_s 为图 2 所示的散射角. 离子引出收集过程中入射离子垂直于收集靶面, 其散射能量为

$$E_1 = K^2 E_c \approx [1 - 2(1 - \cos \theta) \times M_1 M_2 / (M_1 + M_2)^2] E_c, \quad (5)$$

因此可以将捕获概率写为

$$P_{\text{trap}}(E) = \begin{cases} 1 & E \leq E_b / K^2, \\ \frac{1}{K^2} \left(\frac{E_b}{E} \right) & E > E_b / K^2. \end{cases} \quad (6)$$

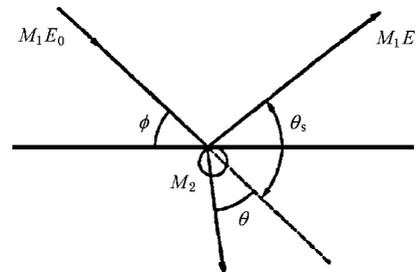


图 2 入射离子在收集板表面的散射

图 3(a) 曲线 2 为用(6)式计算 Cu^+ 打在 W 靶上捕获概率与 E_c 关系曲线. 不同元素的入射离子打在 W 靶上的捕获概率如图 3(b) 所示. 从中可看出, 质量

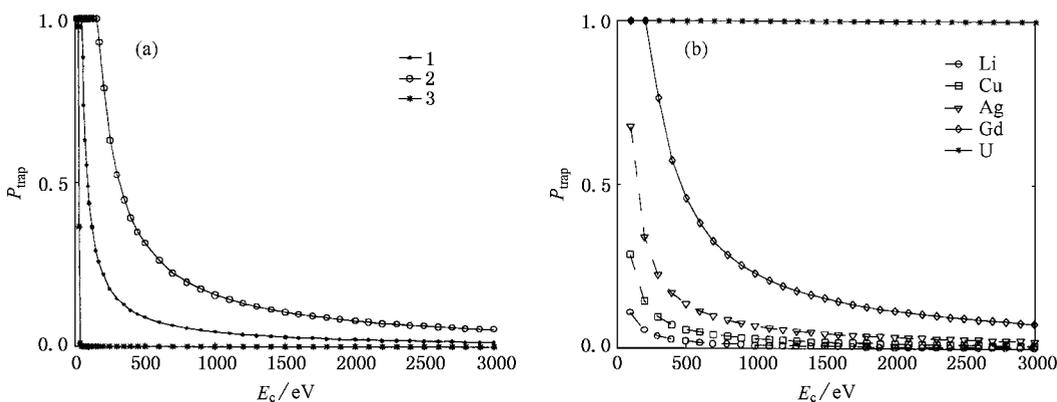


图 3 散射率入射能曲线图 E_c

轻的离子 P_{trap} 较小,随着入射离子质量增加而捕获率 P_{trap} 增加.引入散射系数其计算结果更能反映出离子的捕获和散射特性.

2.3. 溅射系数 $Y(E)$

入射离子被收集板靶面捕获后,不是所有离子都能引起溅射,有一个引起溅射的能量阈值 $E_{\text{th}}^{[11,7,43]}$.能量阈值 E_{th} 不仅与结合能有关,还和入射离子的质量 M_1 ,靶原子的质量 M_2 有关.

$$E_{\text{th}} = \begin{cases} E_B/\gamma(1-\gamma) & M_1 \leq 0.3M_2, \\ 8E_B(M_1/M_2)^{2/5} & M_1 > 0.3M_2, \end{cases} \quad (7)$$

其中

$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2}.$$

入射离子引起靶表面的溅射特性,用溅射系数 $Y(E)$ 来表述,即每个入射离子溅射产生的粒子数定义为溅射系数 $Y(E)^{71}$,

$$Y(E) = \begin{cases} \frac{3.56}{E_B} \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \frac{M_1}{M_1 + M_2} \alpha^* S_N(\epsilon) \left[1 - \left(\frac{E_{\text{th}}}{E} \right)^{2/3} \right] \left(1 - \frac{E_{\text{th}}}{E} \right)^2 & E > E_{\text{th}}, \\ 0 & E \leq E_{\text{th}}, \end{cases} \quad (8)$$

其中 $S_N(\epsilon)$ 为原子的核阻止功率.

$$S_N(\epsilon) = \frac{3.441\sqrt{\epsilon} \log(\epsilon + 2.718)}{1 + 6.35\sqrt{\epsilon} + \epsilon(-1.708 + 6.882\sqrt{\epsilon})}, \quad (9)$$

$$\epsilon = 0.0325 \frac{M_2}{M_2 + M_1} [Z_1 Z_2 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}]^{-1} E, \quad (10)$$

$$\alpha^* = \left(K \frac{M_2}{M_1} + 1 \right)^{-1} \alpha, \quad (11)$$

$$\alpha = \begin{cases} 0.3 \left(\frac{M_2}{M_1} \right)^{2/3} & 0.5 < \frac{M_2}{M_1} < 10, \\ 0.2 & \frac{M_2}{M_1} < 0.5, \end{cases} \quad (12)$$

其中 k 仅是 ϵ 的函数,其平均值 $k = 0.4^{91}$.

2.4. 收集板的离子收集总量

入射离子撞击收集板靶原子散射和溅射的粒子中有次级离子和原子.离子从表面发射出去后,在电场作用下会返回,又被收集板重新收集,而中性原子发射出去,不再回来,即粒子被损失掉.因此引入出射粒子为正离子的概率 $\chi(\theta)$,它与离子的沉积厚度 θ 有关^[12],

$$\chi(\theta) = \begin{cases} 0.85 & \theta \leq 0.12, \\ a - b\theta & 0.12 < \theta < 0.26, \\ 0 & \theta \geq 0.26, \end{cases} \quad (13)$$

其中 $a = 1.58, b = 6.07$ 是常数, θ 的单位是一个原

子厚度.离子收集板收集到的离子总量为

$$\Gamma_1 = (P_{\text{trap}}(E) + \gamma(\theta)(1 - P_{\text{trap}}(E)))\phi St, \quad (14)$$

从收集板溅射出去的粒子总量为

$$\Gamma_2 = (1 - \gamma(\theta))Y(E)\phi St \quad (15)$$

其中 S 是收集板面积, ϕ 为离子通量密度为

$$\phi = \rho v \quad (\text{s}^{-1}\text{cm}^{-2}), \quad (16)$$

ρ 为等离子体密度, v 为离子引出速度.入射离子沉积收集板表面的涂层厚度 θ 为

$$\theta = \theta_0 + (\Gamma_1 - \Gamma_2)\pi r^2 / s. \quad (17)$$

由此可计算收集板收集到的金属厚度, r 是原子半径, s 为收集板离子注入的面积.

如果入射离子流的通量密度是均匀的,即不随时间和空间变化,则由上述公式可计算出 P_{trap} , $Y(E)$, Γ_1 和 Γ_2 , 然后可计算出不同时刻收集到的金属涂层厚度 θ .

3. 各收集参量与入射离子能量 E_c 之间的关系

关于收集参量与入射离子能量之间的关系,这里着重研究了不同收集板材料对不同元素离子的沉积与溅射特性以及不同涂层厚度 θ 时,沉积与溅射特性同入射离子的能量关系.

3.1. 不同涂层厚度 θ 对离子收集特性的影响

离子收集板的涂层厚度不同时,离子的溅射和捕获概率也有所不同.图4为 Ag^+ 在 W 收集靶上的溅射率和收集率 ζ .从图4(a)中可以看出,随 θ 增大,溅射率是增大的,并且随 E_c 值增加而增大.对于锂离子 Li^+ 如图4(e)所示,其变化关系有所不同, Li^+ 的溅射率与 E_c 关系出现了极值,入射能再增加溅射率反而减小.总的来说,涂层厚度增加,溅射效应增强,捕获概率增加,而散射效应减弱.涂层厚度 θ 减小收集率和捕获率随 E_c 增加减小得很快,从图4(c)中看出,当 $\theta = 0.4$ 时,收集率随 E_c 增加很快减小到零.而入射能 $E_c = 6000\text{eV}$ 左右时,收集率为0,即离子引出失败了.这个结果是不正确的,因为捕获率在高 E_c 情况下不会为零,溅射出来的粒子也不应全是原子.可从(13)(15)式看到,当 $\theta > 0.26$ 时, $\gamma(\theta) = 0$,即溅射全是原子,这个结论是不合适的.参照文献[10]的实验结果来看,离子的峰比较窄,但发射原子的峰比较宽.当 $\theta = 0.23-0.26$

时,在一定的温度和能量范围内,发射的原子量变化是很小的.由此我们对(13)式的系数作如下修改.

$$\gamma(\theta) = \begin{cases} 0.85 & \theta \leq 0.12, \\ a - b\theta & 0.12 < \theta < 0.26, \\ 0.2446 & \theta \geq 0.26, \end{cases} \quad (18)$$

其中 $a = 1.369$, $b = 4.324$, 当 $\theta > 0.26$ 时,溅射的离子、原子概率不再改变.收集率的计算结果如图4(d)所示,这时离子引出收集率比(13)式更合理.如果不考虑击穿等的因素,在 10000eV 的能量下离子引出不会失败.

3.2. 不同元素的离子对不同元素靶的溅射特性

研究不同元素离子 Cs^+ , Li^+ , Cu^+ , Gd^+ , Ag^+ , Au^+ , U^+ 在初始时刻 ($\theta = 0$) 收集时的收集率及溅射特性.从图5中可见,入射离子的质量越小,捕获率越小,而散射概率越大,溅射率越小.对 W 靶来说,如图5(c),质量越重的离子总收集率在初始时刻越高.用金属铜作收集靶,不同质量的离子的溅射和收集特性与 W 靶不同.如图5(d)所示, Cu^+ ($Z = 29$) 的溅射率最大,除 Li^+ 外,其他比铜质量重离子随质量增加溅射率变小.图5(e)为铜靶对离子的收集率曲线,质量大于铜的离子在铜靶上的收集率都很高,这表明离子散射溅射以及收集率都和靶的质量大小有关,选择质量比较轻的金属作收集靶来收集重离子,对提高收集率是有利的.图5(f)为用铀金属作收集靶的收集率与 E_c 关系,铀离子的捕获率和总收集率比其他质量的离子都高.综上可知,用质量重的金属作收集靶来收集轻质量的离子是不合适的.但与入射离子同元素金属材料作收集靶可以提高离子的收集率.

3.3. 离子收集沉积过程的溅射特性

在激光等离子体离子收集过程中,收集板上的涂层厚度从0开始逐渐增大,超过单个原子层厚度.现在来研究随原子层厚度的增加,其沉积过程的溅射特性.图6分别给出当收集板电压为 1000V 时, Ag^+ 在 W 靶沉积过程中的溅射、收集特性.收集板原子涂层厚度随引出时间增加呈线性增加.捕获率和溅射率开始时迅速增加,而后捕获率很快趋于不变,当 $\theta = 1$ 之后溅射率不变.收集率的变化有些特殊.开始时迅速增加,当 θ 达到一定厚度,随着沉积原子厚度增加而变小.涂层厚度 $\theta < 1$ 时收集率出现尖峰是由于 P_{trap} 和 $\gamma(\theta)$ 随 θ 变化引起的.在 $\theta =$

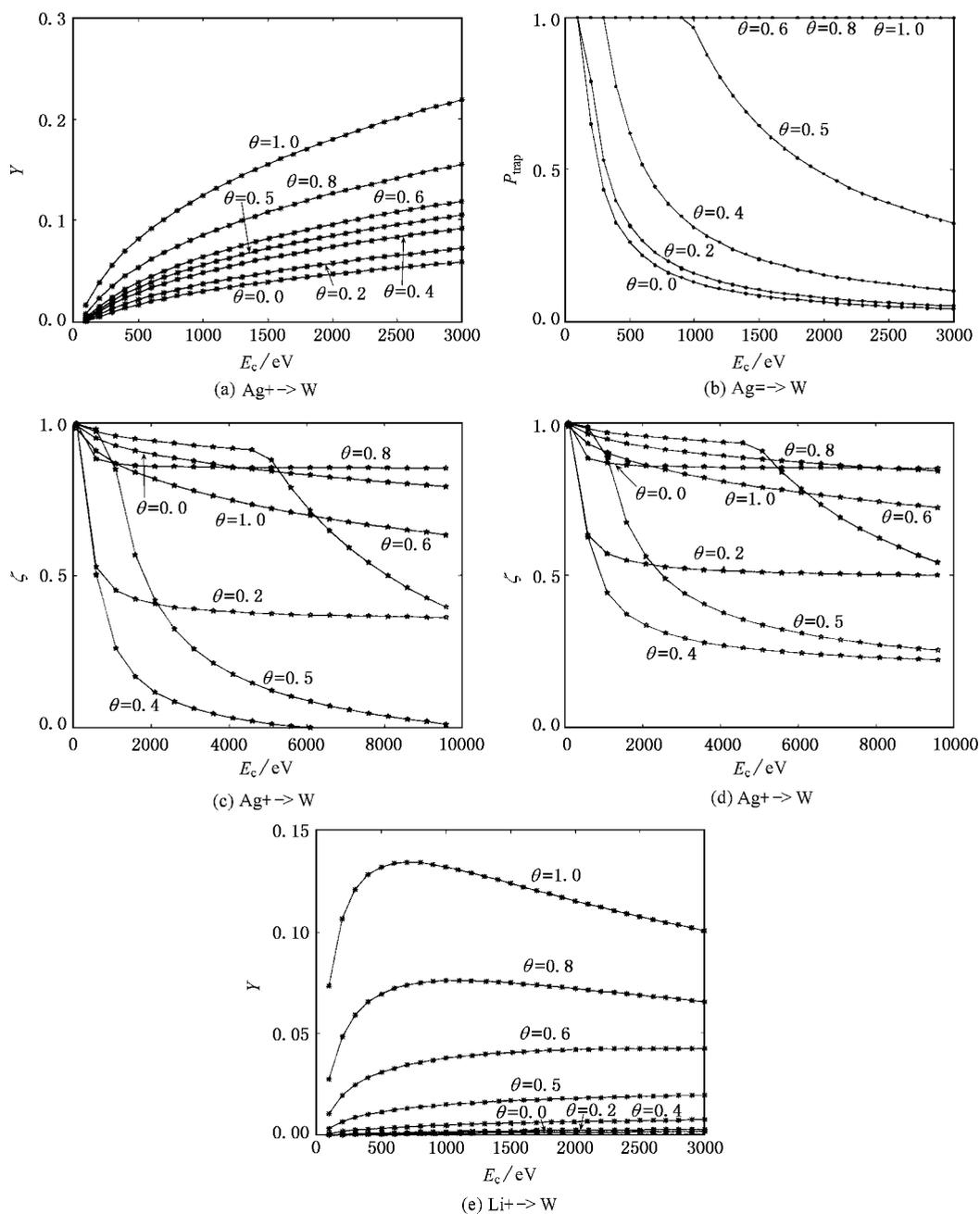


图4 不同沉积厚度对入射离子沉积和溅射特性的影响

1 之后, 涂层为入射离子的元素原子形成的表面, 其结合能为 E_{bc} , 不再变化, 故其收集率就恒定不变. 计算中在 6 s 的时间内共收集到 1.2×10^{17} 个粒子, 总共入射离子数为 1.32×10^{17} 个, 平均收集率为 90.9% .

4. 结 论

本文研究了离子引出收集过程中沉积与溅射的

机理. 对于入射离子注入收集板靶面的结合能 E_b , 离子的捕获概率 P_{trap} 和溅射为正离子概率 $\gamma(\theta)$ 的表达式作了新的表述. 使其结果更能反映离子沉积、溅射的实际过程. 通过计算分析得出如下结论.

1. 随着离子沉积在收集板表面涂层厚度的增加溅射率也在增加, 而且随着引出电压增加, 即离子入射能量的增加, 溅射率也明显增加, 但不是无限增加下去, 而存在极值, Li^+ 的能量高于 700eV, 能量再增加, 溅射率反而减小. 离子质量越重, 其离子溅射

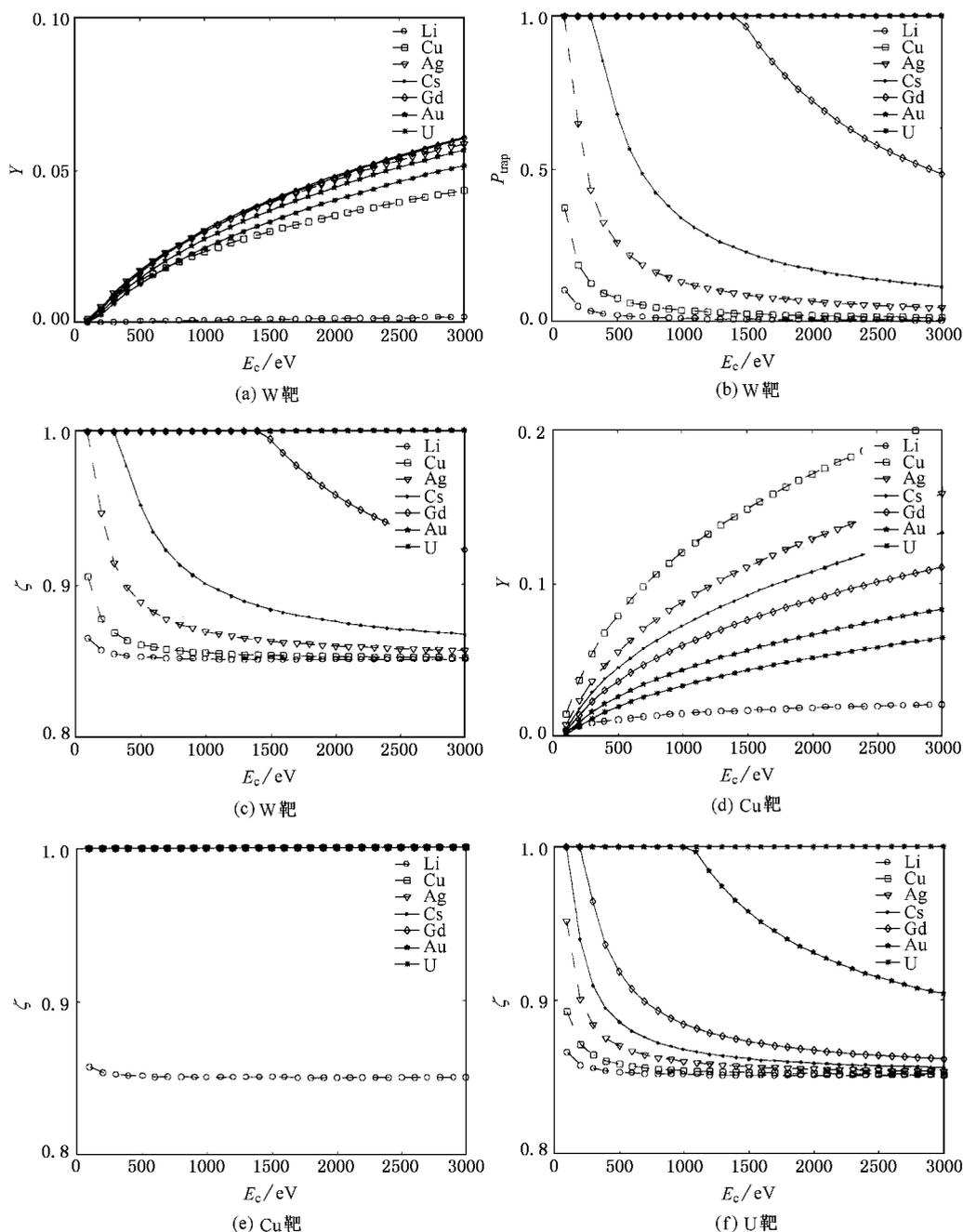


图 5 不同元素的收集靶对入射离子沉积和溅射特性的影响

极值能量越高, Cu^+ 需要 100keV.

2. 离子的引出电压不是越高越好. 因为离子的总收集量随离子的能量 E_c 增加而减小. 因此离子引出电压低于 1000V 时可以获得比较高的离子收集率.

3. 轻质量离子的捕获率相对小, 散射率比较高, 溅射率比较小, 离子收集率也比较小. 因此在相

同离子引出电压下, 质量重的离子的收集率是高的.

4. 入射离子沉积和溅射特性和收集板靶原子质量有关. 质量轻的金属材料作收集靶板, 有利于提高离子的收集率, Cu 靶就比 W 靶要好得多. 用与被收集离子相同元素的材料作收集板, 也可以提高收集率.

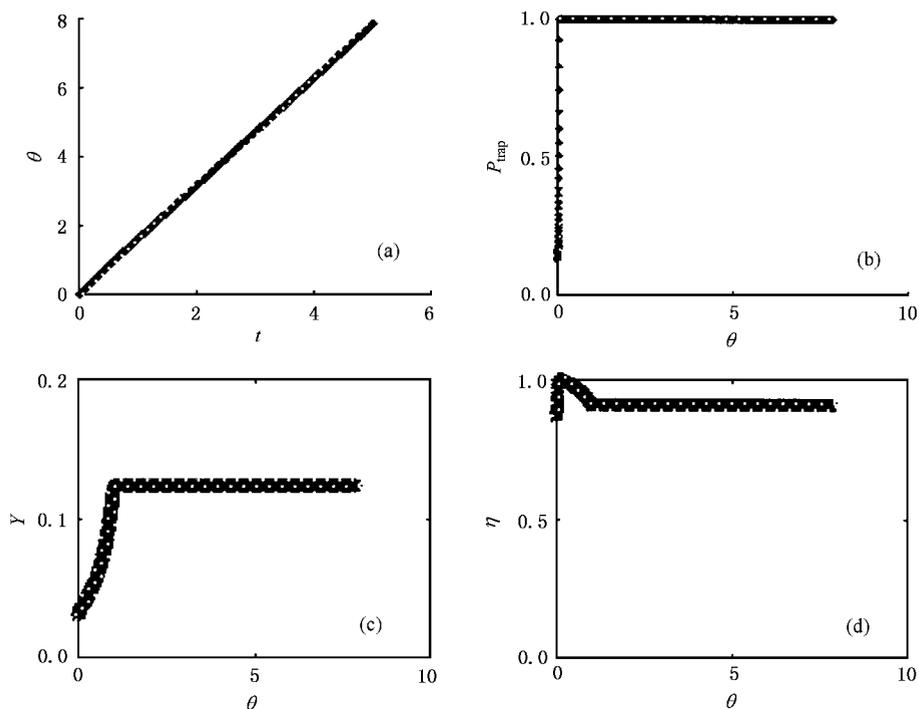


图 6 离子收集过程中的沉积和溅射特性

- [1] Xiong J G and Wang D W 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2420 (in Chinese) [熊家贵、王德武 2000 物理学报 **49** 2420]
- [2] Chen B Q 1990 *Ion plating and sputtering technique* (Beijing : National defence industry press) p80 - 100 (in Chinese) [陈宝清 1990 离子镀及溅射技术 (北京 : 国防工业出版社) 第 80—100 页]
- [3] Ma Y Y , Cheng W W *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1513 (in Chinese) [马燕云、常文蔚等 2000 物理学报 **49** 1513]
- [4] Harrison D E Jr and Magnuson G D 1961 *Physical Review* **122** 1421
- [5] Smith D L 1978 *Journal of Nuclear Materials* **75** 20
- [6] 耿文通 1998 [博士论文] (北京 : 中国科学院物理研究所) 65—68
- [7] Van Amersfoort P W , Tong Y C and Granneman E H A 1985 *J. Appl. Phys.* **58** L2317
- [8] Hurkmans A , Overbosch E G , Olander D R and Losfom 1976 *Surface Science* **54** 154
- [9] Xiong X *et al* 1985 *Surface Physics* (in Chinese) [熊 欣等 1985 表面物理]
- [10] Desplat J L and Papageorgopoulos C A 1980 *Surface Science* **92** 97
- [11] Bohdanský J and Roth J 1980 *J. Appl. Phys.* **51** 2861
- [12] van Amersfoort P W , Geerlings J J C , Kwakman L F Tz , Granneman E H A and Los J 1985 *J. Appl. Phys.* **58** 2312
- [13] Fu G Sh , Yu W *et al.* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2263 (in Chinese) [傅广生、于 威等 2001 物理学报 **50** 2263]

Sediment and sputtering during ion collection^{*}

Zhu Hong-Lian Wang De-Wu

(*Department of Engineering Physics , Tsinghua University , Beijing 100084 , China*)

(Received 27 June 2001 ; revised manuscript received 11 September 2001)

Abstract

This thesis focuses on sediment and sputtering during ion collection , presented a mathematical Physics model for ion sediment and sputtering. The important points lie in binding energy , trapping probability and sputter coefficient , those physics and formulas , provide the number of deposited and lost particles. Simulated the collector , difference projectile energy , projectile ion element sediment coverage and different elements target influence the sputtering characteristic. The conclusion is :The more coverage , the more sputter coefficient ; The ion collection voltage isn ' t higher , better ; Lighter ion , deposited probability smaller ; Ion deposition and sputtering characteristic have something with target quality , light material is better to improving the collect probability .

Keywords : sputtering , trapping probability , sputter coefficient

PACC : 5265 , 8115C

^{*} Project supported by the Special Funds for National Ninth Five-Year Science and Technology Program of China (Grant No. 96-A18-01-02).