

# 离子轰击引起的表面形貌对 Ag 的 溅射产额的影响\*

潘冀生 王震遐 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 赵 烈

杭州大学中心实验室, 杭州, 310028

1991 年 1 月 3 日收到

用捕获膜技术和卢瑟福背散射 (RBS) 谱仪测定 Ag 靶在 27keV Ar<sup>+</sup> 离子轰击下的溅射原子角分布, 从而确定不同剂量下 Ag 的溅射产额, 并对其靶点表面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, 但其溅射产额却随着表面形貌不同而不同。根据溅射产额  $\gamma$  与轰击离子入射角  $\varphi$  的变化关系, 讨论不同轰击剂量下溅射产额的差别, 肯定了表面形貌是影响溅射产额的一个重要因素, 并由此提出“表观产额”的新概念。

PACC: 7920N; 6820

## 一、引 言

荷能离子轰击固体靶表面有许多科学上和工业上的应用价值, 如: 离子刻蚀与表面分析技术相结合可以测定样品成份随深度的变化, 聚变堆-壁材料的筛选, 航天器外壁材料的太阳风模拟, 在微电子技术中的离子溅射刻蚀和镀膜技术等等<sup>[1,2]</sup>。但离子束轰击一般都改变靶表面的形貌结构, 严重影响了测量的深度分辨率, 也限制了在工业上更广泛的应用<sup>[3]</sup>。这是一个令人感兴趣的理论和实验研究课题。尽管过去几年在表面形貌的起源、发展及其稳定性等方面做了不少研究, 然而, 着眼于表面形貌对溅射原子角分布、角度择优发射和溅射产额影响的研究, 却为数不多<sup>[4,5]</sup>。

不久前, 一些作者直接研究过表面形貌对溅射产额的影响。Wehner 等人<sup>[6]</sup>测量了 Cu 的溅射产额, 由于表面充满了轰击造成的锥型结构, 使 Cu 的溅射产额下降到 0.9 原子/离子, 这是因为对于布满锥型结构的表面, 大多数的溅射原子进入锥型结构的“丛林”中, 使得溅射原子在锥型结构之间相互碰撞失去能量, 最后停止下来, 提高了溅射原子被重新捕获的概率, 导致溅射产额的减少。其他作者<sup>[7-9]</sup>也得到具有特征结构表面靶的溅射产额比平滑表面低的结果。但也有一些作者<sup>[10,11]</sup>测量到的溅射产额是增加的, 因为离子

\* 国家自然科学基金资助的课题。

轰击引起表面形貌改变之后,有部分离子是斜入射的,根据 Marsh 等人<sup>[12]</sup>的理论计算,部分角度斜入射造成溅射产额增加。

有人认为<sup>[13]</sup>,造成溅射产额减少的轰击离子能量(200—4000eV)比造成溅射产额增加的轰击离子能量(10keV—1MeV)要低,这样,一些现象能在级联碰撞溅射机制的框架内解释。当用低能离子轰击时,溅射原子角分布相对于表面垂直方向是不对称的,如图 1(a)所示,使得屏蔽作用增加,溅射原子重新捕获抵消了由于离子斜入射引起的增加,使得具有表面形貌靶的溅射产额减小。而当轰击离子能量增加时,溅射原子角分布相对于表面垂直方向是对称的,如图 1(b)所示,这样对溅射原子的重新捕获比较少。由于表面

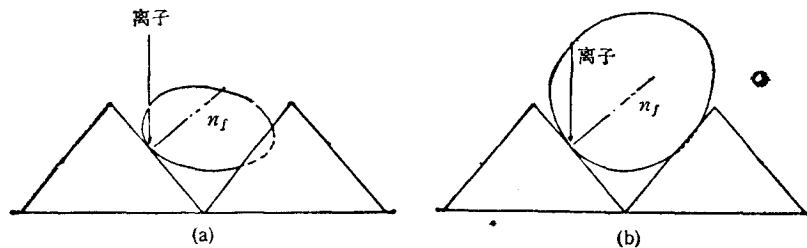


图 1 不同能量离子轰击粗糙表面的溅射原子角分布

- (a) 低能离子轰击引起的溅射原子角分布,这种情况下重新捕获较多  
(b) 高能离子轰击引起的溅射原子角分布,这种情况下重新捕获较少

形貌的形成,使得离子斜入射,造成溅射产额的增加。最近,我们<sup>[14]</sup>用 27keV Ar<sup>+</sup> 离子垂直轰击处于不同温度的 Cd 靶,在不同温度下形成的表面形貌是不同的,并且与溅射原子角分布形状的差别一一对应,说明表面形貌是影响溅射原子角分布形状乃至溅射产额的一个重要因素,入射离子能量不同可能不是影响溅射产额差别的唯一因素,尤其是在能量大于 10keV 区域。

为了获得离子轰击引起表面形貌对溅射产额影响的更多了解,用不同剂量离子轰击 Ag 靶,测量不同剂量轰击下的溅射产额,对其表面形貌的发展过程作了扫描电子显微镜观察,并对溅射产额与表面形貌之间的关联进行讨论。

## 二、实 验

### 1. 样品的制备

用纯度为 99.999% 的 Ag 圆片(直径为 15mm,厚度为 1mm),按照金相抛光要求进行抛光,制成表面无擦痕(在放大 200 倍的金相显微镜下检查)的平整镜面,在上述每一道工序过程中,都注意到使样品充分冷却,所有样品都分别用丙酮、酒精和去离子水进行清洗,并保存在真空靶室内,对未轰击的靶表面用电子显微镜进行观察,可以看出,表面没有预先存在的表面形貌,如图 3(a)所示。

### 2. 溅射实验

离子溅射实验是在本所 R35cm 小型同位素分离器上进行的,27keV Ar<sup>+</sup> 离子经过磁屏蔽分析器、可调狭缝和准直器之后进入靶室,垂直轰击到样品上的 Ar<sup>+</sup> 离子剂量

由束流积分器记录,误差为  $\pm 2\%$ ,平均束流  $\leq 100 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ ,束斑直径为  $3\text{mm}$ ,轰击过程中靶室的真空度保持在  $1 \times 10^{-6}\text{Torr}$ .

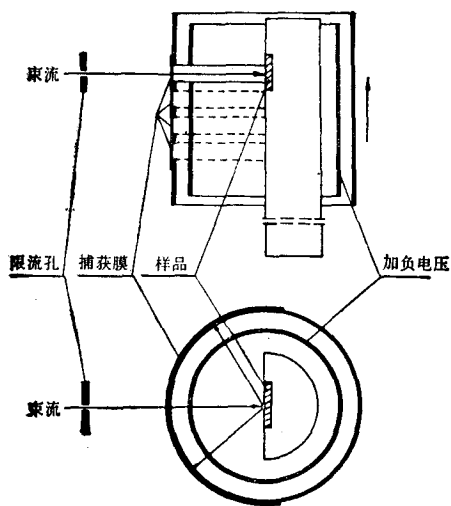


图 2 实验装置示意图

溅射的靶原子由置于以靶点为中心,半径为  $30\text{mm}$  的圆形支架上的高纯度(99.999%) Al 箔捕获。图 2 给出实验装置示意图,装有 Al 捕获膜的圆形支架可以上下滑动,使得当靶被轰击到某一剂量时,可以在不停止离子束轰击的情况下,自动换捕获膜,每条捕获膜的剂量如表 1 所示。

### 3. 溅射产额的测定

捕获膜所收集的 Ag 原子用卢瑟福背散射技术进行分析,分析时使用  $2.0\text{MeV}$  的  $\text{He}^+$  离子束, Au 硅面垒型探测器置于  $170^\circ$  处对背散射的  $\text{He}^+$  离子进行测量,探测系统的总能量分辨率对 Si 而言为  $16\text{keV}$ ,可以利用下述公式求出单位面积的溅射原子数  $(Nt)_{\text{Ag}}$ :

$$(Nt)_{\text{Ag}} = (A_{\text{Ag}}/H_{\text{Al}})(\sigma_{\text{Al}}/\sigma_{\text{Ag}})(\varepsilon/[\varepsilon_0]_{\text{Al}}),$$

式中  $A_{\text{Ag}}$  为能谱中对应于待分析 Ag 原子背散射峰下总计数,  $H_{\text{Al}}$  为捕获膜 Al 在能谱中的高度,  $\sigma_{\text{Ag}}$  和  $\sigma_{\text{Al}}$  分别为 Ag 原子和 Al 原子的卢瑟福散射截面,  $\varepsilon$  为道宽,  $[\varepsilon_0]_{\text{Al}}$  为  $\text{He}^+$  离子在 Al 中的阻止截面因数。

由于捕获膜上的不同位置对应于不同的溅射原子发射角度  $\theta$  (见图 2), 因此对各个捕获膜均进行 8 至 9 个位置分析之后,可以得到相应的溅射原子角分布,使用最佳拟合求积分后而得到不同剂量 Ag 的溅射产额,分别列在表 1 中。

表 1 相对于每一条溅射捕获膜,靶上轰击剂量的增长值和累积值以及每个剂量的溅射产额

捕 获 膜	$\Delta\phi(\text{Ar}^+/\text{cm}^2)$	$\phi(\text{Ar}^+/\text{cm}^2)$	Y (原子/离子)
1	$6.4 \times 10^{16}$	$6.4 \times 10^{16}$	8.79
2	$9.6 \times 10^{16}$	$1.6 \times 10^{17}$	12.64
3	$3.0 \times 10^{17}$	$3.2 \times 10^{18}$	10.76

$\Delta\phi$  为当某一条捕获膜收集溅射原子时靶上的剂量。

$\phi$  为当某一条捕获膜收集溅射原子完成时靶上的总剂量。

## 三、结果与讨论

用 S-STO 型扫描电子显微镜 (SEM) 对不同剂量轰击的表面进行观察。图 3 (见图版 1) 给出不同剂量轰击下靶点形成的表面形貌以及模型示意图,它基本上是类球体状

的凸出物,但随着轰击剂量的增加,类球状物越来越凸起,其相应球的直径也越来越大,对于表面形貌的产生和发展,许多作者对此进行了详细的讨论<sup>[4]</sup>。按照我们的实验条件,离子轰击造成的缺陷使之提高溅射产额(在缺陷区),造成表面的粗糙度,垂直入射和斜入射的溅射产额的不同,是引起表面形貌改变的重要原因,而其几何花样势必对溅射原子角分布和溅射产额产生影响。

Marsh 等人<sup>[12]</sup>给出一个关于溅射产额  $Y$  与轰击离子入射角  $\varphi$  的关系式

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

式中  $\varphi$  为相对于表面法线量度的入射角。图 4 为根据上式给出的溅射产额随角度的变化

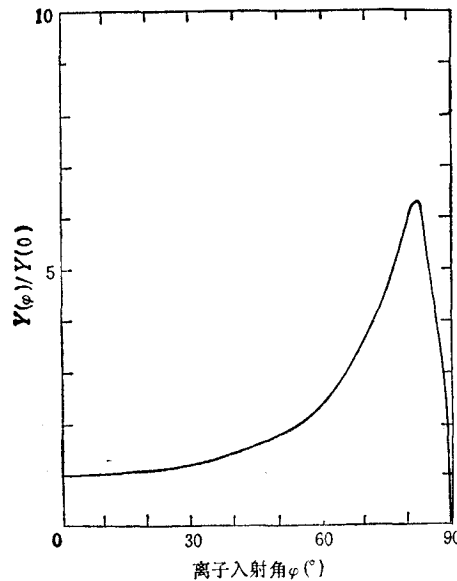


图 4 溅射产额  $Y(\varphi)/Y(0)$  随入射离子入射角  $\varphi$  的变化

情况,从图 4 中可以看出,达到极大产额时的入射角  $\varphi_{opt}$  介于  $60^\circ$  至  $80^\circ$  之间。当入射角  $\varphi > \varphi_{opt}$  时产额迅速减小,其中存在某个角度  $\varphi_0$  使得  $Y(\varphi_0) = Y(\varphi = 0)$ , 那么,离子入射角在  $0 < \varphi < \varphi_0$  角度范围内,  $Y(\varphi) > Y(0)$ , 即溅射产额比垂直入射时大,在  $\varphi > \varphi_0$  区域内  $Y(\varphi) < Y(0)$ , 即溅射产额将减少。一般认为,产额在  $\varphi > \varphi_{opt}$  的迅速减小,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。

如图 3 所示,在  $Ar^+$  离子剂量为  $6.4 \times 10^{16} Ar^+/cm^2$  时,形貌显示出布满圆形隆起物,如果仍然将它称作类球体,那么此时这些隆起只是球体的一小部分(图 3(b')),而且离子最大入射角  $\varphi$  要比  $\varphi_{opt}$  小很多,这说明产额应当增大,但增大不多,假设此时的溅射产额为  $Y_1^*$ 。当  $Ar^+$  离子剂量达到  $1.6 \times 10^{17} ion/cm^2$  时,形貌变为布满较小直径的类球体(图 3(c)),虽然入射角大部分还是在  $0 < \varphi < \varphi_0$  角度范围内,但此时的离子最大入射角  $\varphi$  可以接近甚至超过  $\varphi_{opt}$ , 所以溅射产额(假设为  $Y_2^*$ )将有较大的增加。进一步使轰击  $Ar^+$  离子剂量增至  $3.2 \times 10^{18} ion/cm^2$  时,出现小类球体聚集成较大类球体的表面形貌(图 3(d')),这时  $\varphi$  角的变化范围虽然与图 3(c')相似,但类球体的面数密度显然较

图 3(c') 减少, 并且类球状凸起物显然增高, 增大了对溅射原子的屏蔽作用, 因而此时的产额  $Y_3^p$  应比图 3(c') 形貌时对应的产额  $Y_2^p$  要小. 由此得到如下结果, 由于表面形貌的影响, 下述关系:

$$Y_1^p < Y_2^p > Y_3^p$$

成立, 这趋势恰与实验测量值相符.

当然, 上述讨论的是影响产额的重要因素, 较为细致考虑对溅射产额的影响时, 还需计及反射离子的再溅射等因素的影响. 另外, 由于表面形貌一般都是三维(立体)不对称的, 因而, 除了上述  $z$  轴对称的形貌之外, 尚存在很多各种不对称情况, 在具有这些表面形貌情况下溅射, 形貌特征对溅射产额的影响, 一般讲也是空间不对称的, 因而是很复杂的. 目前在理论上对此类问题的处理, 仅限于特殊情况, 更多地还是靠实验测定.

在完成表面形貌对溅射产额影响的讨论之前, 非常有必要说明的是, 不同剂量下的溅射产额是在其不同的表面形貌发展过程中测量到的, 而我们的讨论是针对某一轰击剂量下得到的固定表面形貌进行的, 而事实上表面形貌在轰击过程中却不断发生变化. 但从本实验得到的三个剂量的扫描电子显微镜照片可看出, 在离子束轰击过程中, 表面形貌随轰击剂量变化是连续的, 中间不存在着突变, 起初是类球体状的凸出物, 随着轰击剂量的增加, 类球状物越来越凸起, 其相应球的直径也越来越大. 所以, 虽然上述的讨论是针对某一剂量下得到的表面形貌进行的, 但可以反映动态发展过程中的情况.

关于表面形貌对溅射产额的影响, 特别要指出的重要问题是: 在达到稳定态的溅射实验中, 一般被轰击的样品表面都逐渐形成了一定的表面粗糙结构, 因而溅射产额都是在一定表面形貌条件下得到的(严格讲是在表面形貌发展过程中测量到的), 此时测得的结果可以把它们叫作“表观溅射产额  $Y^p$ ”, 它与根据平整样品表面获得的产额  $Y$  是有差别的, 一般而言有如下关系:

$$Y^p = Y + \Delta Y,$$

$\Delta Y$  可能为正或负值, 视表面形貌结构情况而定.

## 四、结 论

用 27keV  $Ar^+$  离子, 在不同的剂量下轰击 Ag 靶, 得到不同花纹的表面形貌, 以及溅射产额随轰击剂量的变化. 从初步测定的结果, 可得出下述结论:

(1) 在离子溅射过程中, 一般都伴随着形成凹凸不平的表面, 这样离子就不会以相同的人射角  $\varphi$  轰击具有形貌花纹的靶表面. 由于离子入射角  $\varphi$  差别直接影响溅射产额, 因而表面形貌是影响溅射产额的一个重要因素, 这在我们的实验结果中得到进一步证实.

(2) 稳定态的溅射实验均使靶点产生一定的表面形貌, 由于表面形貌对溅射产额有不可忽视的影响, 因而过去长时间以来所取得的实验产额实际上都应称其为“表观产额”. 它与平整表面情况下的溅射产额不相等, 将其值与理论(通常都以平整表面为条件)预言比较研究是没有意义的, 因而有必要重新从表面形貌对产额的影响角度来估价所有的实验结果, 这一点对聚变堆-壁材料的研究也有重大意义.

上海合金厂王承宝、林贞昌在样品处理方面,本所邹志宜及其同事在溅射实验中,4MV 静电加速器运行组成员在 RBS 分析时,都给予有效的帮助,谨此深表谢忱。

- [ 1 ] R. Behrisch, *Sputtering by Particle Bombardment I and II*, Berlin: Springer, (1981) and (1983).
- [ 2 ] A. W. 赞德纳,表面分析方法,国防工业出版社,(1984).
- [ 3 ] M. Tanemura and F. Okuyama, *Surface Science*, 181(1987), L193.
- [ 4 ] Wang Zhenxia, Zheng Liping and Pan Jisheng, *Rad. Eff. and Def. in Solids*, 108(1989), 351.
- [ 5 ] 王震遐、泮冀生、陶振兰、章骥平、张慧明、张伟坪、卢兆伦,物理学报,40(1991),316.
- [ 6 ] G. K. Wehner and D. J. Hajicek, *J. Appl. Phys.*, 42(1971), 1145.
- [ 7 ] D. M. Mattox and D. J. Sharp, *J. Nucl. Mater.*, 80(1979), 115.
- [ 8 ] J. F. Iiegler, J. J. Cuomo and J. Roth, *Appl. Phys. Lett.*, 36(1977), 268.
- [ 9 ] J. K. G. Panitz and D. J. Sharp, *J. Vac. Sci. Technol.* 17(1980), 282.
- [ 10 ] J. J. Ph. Elich et al., *Rad. Effects*, 8(1971), 1.
- [ 11 ] B. Emmoth *et al.*, Proceedings of the Symposium on Sputtering, Perchtoldorf-Austria (1980), p. 632.
- [ 12 ] T. Marsh and R. Collins, *Rad. Eff.*, 99(1986), 171.
- [ 13 ] O. Auciello, *Rad. Effects*, 60(1982), 1.

## INFLUENCE OF SURFACE TOPOGRAPHY ON THE SPUTTERING YIELDS OF SILVER

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

*Shanghai Institute of Nuclear Research, Academia Sinica, Shanghai, 201800*

ZHANG HUI-MING    ZHAO LIE

*Central Laboratory, Hangzhou University, Hangzhou, 310028*

(Received 3 January 1991)

### ABSTRACT

The angular distributions and yields of silver atoms sputtered from a Ag sample have been measured using collector technique and RBS analysis. The Ag target was sputtered at normal incidence with 27keV Ar<sup>+</sup> ions. The irradiated surface was examined by scanning electron microscopy. It was found that all the angular distributions were over-cosine with different irradiation dose, but the sputtering yields were dose-dependent. The experimental result can be explained with surface topography and sputtering yield as a function of the angle of incidence. It is found that surface topography seems to be an important factor to influence sputtering yield. A new concept, namely "apparent yield", is presented.

PACC: 7920N; 6820