

$^{28}\text{Si}_n^-(n=1,2)$ 离子对 Ag 表面的 溅射研究*

王震遐 潘冀生 章骥平 陶振兰 杜光天

(上海原子核研究所, 上海 201800)

王传珊 李欣年 谢谔芬

(上海科技大学, 上海 201800)

(1994年4月8日收到)

用原子捕获膜技术结合卢瑟福背散射谱, 测定了具有相同原子能量 (16 keV/原子) 的 $^{28}\text{Si}_n^-(n=1,2)$ 离子冲击 Ag 靶的溅射原子角分布. 结果表明, $^{28}\text{Si}_n^-$ 冲击引起的 Ag 原子角分布较 $^{28}\text{Si}^-$ 冲击在小发射角 θ (Ag 原子发射方向与靶表面法线方向之间的夹角) 区有更大的增强. 结合扫描电子显微镜对靶点表面的分析, 我们认为这种角分布变化, 可能暗示必须考虑靶点表面形貌特征差别的影响.

PACC: 3640; 6180J; 6890

1 引 言

在 1975 年, Anderson 和 Bay^[1] 首先发表了关于双原子和三原子小集团离子的溅射产额与同类原子离子溅射产额相比较的实验结果, 观察到能量为 E 的集团离子 $A_n^+(n$ 为组成集团的原子数) 的溅射产额 $Y_{A_n}(E)$ 相对与同类原子 (A) 离子 A^+ 溅射产额 $Y_A(E/n)$ 的增强效应. 换言之, 如用 ϵ 表示集团离子溅射产额与集团中所有原子作为单个离子的溅射产额总和 $nY_A(E/n)$ 的比例 (一般可称 ϵ 为增强因子):

$$\epsilon = Y_{A_n}(E)/nY_A(E/n). \quad (1)$$

由此可以看出, 若 $\epsilon = 1$, 即意味着集团离子的溅射产额, 是组成该集团所有原子作为单个离子溅射产额的线性迭加, 因而无增强效应可言. 若 $\epsilon > 1$, 则表明集团离子溅射出现了非线性增强.

集团溅射的非线性效应, 曾引起很多人的兴趣, 对增强效应机制进行了不少有意义的探讨, 归纳起来主要有两种观点: 一些作者认为, 增强效应是由入射集团诱发原子碰撞级联的非线性发展而出现的“热峰 (spike)”现象引起的^[2-4]. 在非线性的碰撞级联内, 大量的反冲原子获得足够克服表面结合能的能量, 从而增大了溅射产额. 另一些作者则认为, 溅射产额的增大主要是由于靶点表面原子层被破坏 (disruption) 而降低了原子的表面结

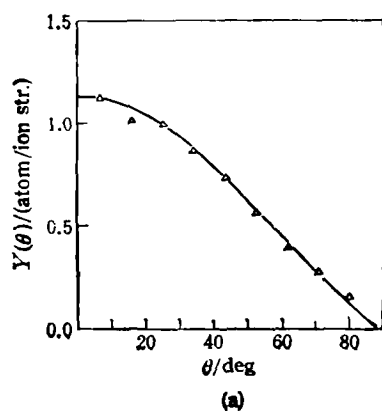
* 国家自然科学基金资助的课题.

合能所致^[5-7]。广泛的研究表明,溅射原子主要来自表面第一到第三原子层,而溅射原子角分布对碰撞级联内靠近表层反冲原子运动的反应甚为敏感^[8]。可见,如果上述的另一种观点正确,首先应当在溅射原子角分布形状上有所反应。同时,这一结论如果对集团离子溅射正确,则对任何对表面可以引起不同破坏程度的离子溅射也应当是有用的,即使这些离子诱发了线性级联碰撞。由于在实验方面,就我们所知,至今尚未见到关于集团离子溅射原子角分布的报道,因此我们对 $\text{Si}_n^-(n=1,2)$ 冲击 Ag 表面的溅射原子角分布进行了测定,同时观察分析了靶点表面的形貌变化。结果表明, Si_1^- 冲击引起的角分布在小发射角区较 Si_2^- 冲击有更大的增强,且二者冲击产生的靶点表面形貌特征存在差别。我们认为,这种趋势,可能是表面形貌差别引起的。

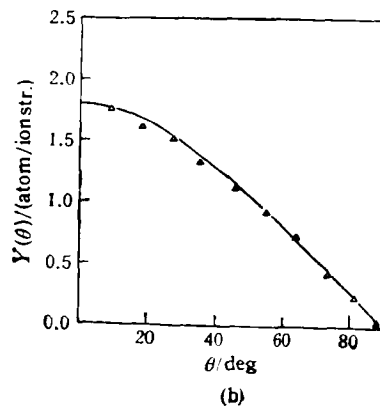
2 实 验

实验在负离子源实验台架装置上进行。 Cs^+ 离子溅射高纯 Si 靶材料产生的 Si_n^- 集团离子,经质谱分析并加速后形成荷能集团(选定 n)束,垂直轰击高纯 Ag 样品表面。样品为厚 1 mm, 直径 15 mm 的 Ag 片,在溅射之前,样品表面进行金相抛光和清洗,直至在高倍扫描电子显微镜 (SEM) 观察表面无擦痕时为止。经抛光后的样品装在(保持良好接触)用液氮间接冷却的样品架上,在样品周围的直径为 50 mm 的圆桶形支架上放置铝 (99.999% 纯度) 捕获膜,用来收集从 $\sim 0^\circ$ — $+90^\circ$ 和 $\sim 0^\circ$ — -90° 范围内发射的溅射 Ag 原子,详细的几何结构见文献[9]。 Si_1^- 和 Si_2^- 束轰击具有相同的结构和表面处理条件的样品,实验条件均为:束流垂直表面入射,靶点直径 3 mm,束流强度控制在 $30\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 左右,总剂量为 $6.3 \times 10^{16} \text{ Si}_n^-/\text{cm}^2$,在溅射过程中,靶室真空度好于 $1 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ 。

溅射实验结束后,Al 捕获膜移入卢瑟福背散射谱 (RBS) 靶室。由 4 MV 静电加速器引出的 2 MeV He^+ 离子束对准 Al 膜上不同位置(这些位置分别对应于溅射原子的不同发射角 θ),测定溅射 Ag 原子数密度,经简单计算即可得到单位立体角内的溅射



(a) 16 keV Si_1^- 轰击 Ag 靶表面的溅射原子角分布



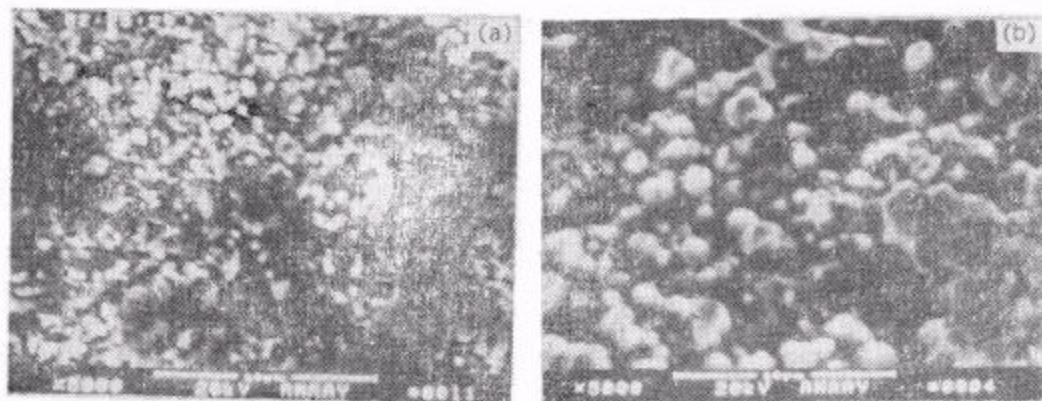
(b) 32 keV Si_2^- 离子对 Ag 靶的溅射角分布,入射能量均为 16 keV/原子

图 1

原子数 $N_i(\theta)$, 并按照下列公式计算溅射原子微分产额:

$$Y(\theta) = N_i(\theta)/Q. \quad (2)$$

式中 Q 为溅射过程中入射的 Si_n^- 离子总数, 从而求出 $Y(\theta)-\theta$ 关系, 即溅射 Ag 原子角分布, 如图 1(a), (b) 所示. 图 1 中的三角形点为实验测定值, 曲线为按(9)式取表 1 中参数进行拟合的结果. 另外, 对应于 Si_1^- 和 Si_2^- 轰击的两个 Ag 样品靶点表面分别移入 SEM 真空室进行观察, 图 2(a), (b) 分别给出了 Si_1^- 和 Si_2^- 溅射的靶点表面形貌照片.



(a) 16 keV $^{28}\text{Si}_1^-$ 离子轰击 Ag 样品时的靶点表面形貌

(b) 32 keV $^{28}\text{Si}_2^-$ 离子轰击时的靶点表面形貌. 样品状况和实验条件均相同

图 2

表 1 按(9)式对 $^{28}\text{Si}_1^- \rightarrow \text{Ag}$ 和 $^{28}\text{Si}_2^- \rightarrow \text{Ag}$ 原子溅射角分布进行拟合计算的参数

微区溅射角分布	$Y_1(\theta)$				$Y_2(\theta)$				$Y_3(\theta)$			
拟合参数	A_1	C_1	n_1	θ_{z1}	A_2	C_2	n_2	θ_{z2}	A_3	C_3	n_3	θ_{z3}
$^{28}\text{Si}_1^- \rightarrow \text{Ag}$	0.3	3.2	1.1	0°	0.4	0.2	3.0	60°	0.3	0.3	2.0	50°
$^{28}\text{Si}_2^- \rightarrow \text{Ag}$	0.3	5.4	1.0	0°	0.3	0.3	1.1	60°	0.4	0.2	1.1	$\sim 50^\circ$

3 结果与讨论

3.1 溅射产额和增强因子 ϵ

对实验测定数据进行最佳拟合获得的溅射原子角分布, $Y_{\text{Si}_n}(\theta)$, 是发射角 θ 的函数, 可以通过下式求出溅射原子产额 Y_{Si_n} :

$$Y_{\text{Si}_n} = 2\pi \int_0^{\pi/2} Y_{\text{Si}_n}(\theta) \sin \theta d\theta. \quad (3)$$

从而得到, $Y_{\text{Si}_2^-} = 5.3$ 原子/ Si_2^- , $Y_{\text{Si}_1^-} = 3.0$ 原子/ Si_1^- . 考虑到实验误差按(1)式计算之后, 可以给出 $\epsilon = 0.88 \pm 0.1$, 可见 $\epsilon \approx 1$. 换言之, Si_2^- 离子溅射 Ag 靶没有发生非线性产额增强效应.

Thompson 和 Joher 曾分析了不同的入射离子小集团对 Ag 靶的溅射^[9]后认为, 溅射产额的增强和不增强与入射离子在 Ag 中的核阻止截面 S_n 有关. 在文献[5]的图 2 中, 作者给出了原子有效表面结合能 $U_{o,eff}$ 与 S_n 的关系曲线. 在 $S_n < 200 \text{ eV}/\text{\AA}$ 区域, $U_{o,eff}$ 的数值较高 ($\sim 2 \text{ eV}$) 且几乎是不变的常数. 但在 $S_n \geq 200 \text{ eV}/\text{\AA}$, 特别在 $S_n > 600 \text{ eV}/\text{\AA}$ 之后, $U_{o,eff}$ 迅速减小且在 $U_{o,eff} \approx 1000 \text{ eV}/\text{\AA}$ 时降至 $\sim 0.1 \text{ eV}$ 的低值. 因此, 他们指出: 在 $S_n \leq 100 \text{ eV}/\text{\AA}$ 时无非线性增强效应. 由于 $\text{Si}_n^-(n=1, 2)$ 在 Ag 中的阻止截面估计值均小于上述临界值, 因而我们的实验结果是可以理解的.

3.2 溅射原子角分布的形状变化

实验结果表明, $\text{Si}_n^-(n=1, 2)$ 轰击 Ag 靶的溅射过程应在线性级联碰撞的框架内加以考虑. 众所周知, 按照 Sigmund 理论^[10], 溅射原子角分布形状应当是 cosine 型的, 这显然与我们的实验结果 over-cosine 形状相去甚远. 另外, 虽然 $\text{Si}_n^-(n=1, 2) \rightarrow \text{Ag}$ 体系在现在的入射能量情况下, 并无溅射产额增强现象, 因而不存在增强机制的分析问题, 但是“表面破坏”对角分布有影响的观点仍然是可以考虑的. 按照 Shapiro 等的分析^[11], 由于集团离子较单原子离子对表面有更大的破坏, 从而认为前者引起的角分布较后者在小角度区有更大的增强. 但是, 我们的实验结果恰恰相反, 从图 1 可以看出, Si_1^- 离子溅射的 Ag 原子角分布[图 1(a)] 反而比 Si_2^- 离子溅射角分布(图 1(b))在小发射角区出现了更加显著的增大. 由此看来, 表面第一原子层被破坏的观点在我们的情况下也不能应用.

对单元素靶的溅射原子角分布与 cosine 形状的偏离现象, 很多作者已经进行过广泛的研究. 在理论上, Sigmund 及其同事^[12,13]曾指出, 从较深层溅射出的反冲原子将在围绕靶点表面法线方向很小的锥体内择优发射. Shapiro 等^[14]和 Yamamura 等^[15]都对分别来自靶表面最外几个原子层的溅射原子角分布做过模拟计算, 证实了上述看法的正确性, 但是 Yamamura 等结果与 Sigmund 等结果的不同之处是, 当入射能量 $E > 1 \text{ keV}$ 时, 来自表面第一层的溅射原子角分布也呈 over-cosine 形状. 也有很多实验研究涉及到角分布的形状问题, 具有代表性的研究可以 Anderson 等^[16]的工作为例. 在用 80 keV Ar^+ 离子轰击一些元素靶均获得 Over-cosine 角分布之后, 他们用符合函数 $\cos^n \theta$ 来描述这些溅射原子角分布(“形状因子” n 取大于 1 的某一数值), 但并未对这种描述加以任何物理解释. 至于靶点表面形貌特征对溅射原子角分布的影响, 过去虽然很少有人研究, 但近来作者们进行的探索表明, 从凹陷处发射的原子受到了附近凸起部分的屏蔽, 可能是影响角分布形状的重要因素^[17-19]. 以上讨论可见: 任何溅射原子在发射之前会受到某种碰撞规律的支配, 决定其发射方向, 但在离开表面之后, 将受到周围凸起部位的屏蔽. 假设屏蔽意味着对发射原子的“捕获”, 则可以定义一个屏蔽角 θ_i (发射原子方向与靶平面的夹角), 在屏蔽角范围内溅射原子被吸收而不能发射, 在 θ_i 范围之外 ($\pi/2 - \theta_i$), 溅射原子按碰撞规定的方向发射. 因此, 按照“微区叠加原理”^[19], 在靶点表面任意选取的面积元 ΔS_i 上的溅射微分产额 $Y_i(\theta)$ 可以写成下式:

$$Y_i(\theta) = y_i(\theta) \cdot G_i(\theta). \quad (4)$$

式中 $y_i(\theta)$ 是按级联碰撞规律发射, 不受任何屏蔽的溅射微分产额, $G_i(\theta)$ 是几何屏蔽

因子。按上述假设,当发射角 θ 在 $0^\circ < \theta \leq (\pi/2 - \theta_i)$ 区间, $G_i(\theta) = 1$, 但是当 $(\pi/2 - \theta_i) < \theta \leq \pi/2$ 时, $G_i(\theta) = 0$ 。

根据 Falcone 和 Sigmund 理论^[13,15], $y_i(\theta)$ 为(只考虑 Si^- 垂直入射情况):

$$y_i(\theta) = \{[B_i \Gamma \cos \theta] / [8\pi(1-m)(1-2m)AU_i^{1-2m}]\} \cdot [1 + 2(1-m)\Gamma_i U_i^{1/2} g_m(\cos \theta)], \quad (5)$$

式中 A, B_i, Γ 和 Γ_i 均与 θ 无关, U_i 是表面结合能, m 取 0 到 1 之间的数值, $g_m(\cos \theta)$ 与 $\cos \theta$ 变化的曲线在 Yamamura 等的文章图 1 中已给出 ($m=0$ 和 0.055)^[13]。将 $y_i(\theta)$ 代入(4)式,得到

$$Y_i(\theta) = \{[B_i \Gamma \cos \theta] / [8\pi(1-m)(1-2m)AU_i^{1-2m}]\} \cdot [1 + 2(1-m)\Gamma_i U_i^{1/2} g_m(\cos \theta) \cdot G_i(\theta)], \quad (6)$$

换言之,微区 ΔS_i 的溅射原子角分布由两个因子决定,一是线性级联碰撞动力学决定的角分布函数 $y_i(\theta)$, 其二是几何屏蔽因子 $G_i(\theta)$ 。另外,(5)式由两项组成,第一项给出 cosine 型角分布,第二项在 m 取值于 0 到 0.91 之间时给出的角分布均为 over-cosine 形状。由此,二项之和将给出 over-cosine 型的角分布结果,因而 $y_i(\theta)$ 可用 $\cos^n \theta$ 函数代替,(6)式可改写为

$$Y_i(\theta) = C_i \cos^n \theta \cdot G_i(\theta), \quad (7)$$

C_i 为角分布强度拟合常数。全靶点面积的溅射原子角分布,应当是各微区的线性叠加,即

$$Y(\theta) = \sum A_i C_i \cos^n \theta \cdot G_i(\theta), \quad (8)$$

式中 A_i 为第 i 微区占靶点总面积的分数, $\sum A_i = 1$ 。另外,由图 2 可见, $^{28}\text{Si}_1^-$ 和 $^{28}\text{Si}_2^-$ 离子轰击的表面形貌变化,存在明显差异。但它们的基本特征却是相似的,即两者表面均分布着较平坦的基体,较深的侵蚀坑和凸起物。因此,我们可以把靶点表面形貌同样划分为三类具有共同典型特征区域。第一类为较平坦的(包括远离凸起物和较平坦的凸起物顶部)基体部分,第二类为侵蚀坑底部区域,第三类区域则是凸起物丛内(接近凸起物)的基体部分。设所有的基体表面和侵蚀坑底部表面均可看成平面,即 Si^- 离子相对于这些表面均可看为垂直入射,则溅射原子角分布应是三类区域溅射的线性叠加,即(8)式可以只取三项:

$$Y(\theta) = A_1 C_1 \cos^{n_1} \theta \cdot G_1(\theta) + A_2 C_2 \cos^{n_2} \theta \cdot G_2(\theta) + A_3 C_3 \cos^{n_3} \theta \cdot G_3(\theta). \quad (9)$$

在利用(9)式进行拟合计算时,我们选取了最佳参数 C_i 和 n_i , 并从图 2 分别估算出不同形貌特征区所占靶点面积的分数 A_i 和不同的平均屏蔽角 θ_{mi} (见表 1)。如图 1 所示,所得结果是令人满意的,尽管我们的“微区叠加”拟合是在一些假设(表面形貌特征典型化,凸起物侧面和侵蚀坑壁对发射原子的全捕获等),和对形貌尺寸使用了估计值等前提下给出的,但是这种半定量计算对实验数据的符合说明,集团离子溅射角分布即使在线性碰撞情况仍需考虑“表面破坏”的影响。不过,看来只注意第一原子层破坏的作用可能是不够的,表面形貌影响应当受到重视。至于 $^{28}\text{Si}_1^-$ 和 $^{28}\text{Si}_2^-$ 为何引起具有明显差别的表面形貌变化,这是一个很有趣但已超出本文范围的问题。我们正在进行这方面的研究,结果将在以后的论文中讨论。

4 结 论

1) 我们的实验表明, 能量为 16 keV/原子的 $^{28}\text{Si}^{n-}(n=1, 2)$ 离子轰击多晶 Ag 靶时, 没有看到溅射产额的非线性增强效应。

2) $^{28}\text{Si}^{1-}$ 和 $^{28}\text{Si}^{2-}$ 离子轰击引起的溅射 Ag 原子角分布, 形状有明显差别。虽然两者皆为 over-cosine 形状, 但后者较为接近 cosine 型, 而前者, 即 $^{28}\text{Si}^{1-} \rightarrow \text{Ag}$ 系统, 在小发射角区则有更大的增强。

3) 我们考虑了二者表面形貌特征差异, 用“微区叠加”模型可以解释所出现的角分布差别。但是由于至今为止尚未见到有关集团离子溅射原子角分布实验结果发表, 因此, 更多的实验研究是非常必要的。

- [1] H.H. Anderson and H.L. Bay, *J. Appl. Phys.*, **46**(1975), 2416.
- [2] D.A. Thompson, R.S. Walker and J.A. Davies, *Radiat. Eff.*, **32**(1977), 135.
- [3] M.Szymonski and A.E. Devries, *Phys. Lett.*, **A63**(1977), 359; M.Szymonski, R.S. Bhattacharya, H.Overeijnder and A.E. Devries, *J.Phys.*, **D11**(1978), 751.
- [4] D.J. Costra, R.P. Van Inger, A. Haring, A.E. Devries and F.W. Saris, *Phy. Rev. Lett.*, **61**(1988), 1392.
- [5] D.A. Thompson and S.S. Joher, *Appl. Phys. Lett.*, **34**(1979), 342.
- [6] S.S. Joher and D.A. Thompson, *Surf. Sci.*, **90**(1979), 319.
- [7] M.H. Shapiro and T.A. Tombrello, *Nucl. Instr. Meth.*, **B48**(1990), 557.
- [8] K.M. Hubbard, R.A. Weller, D.L. Weathers and T.A. Tombrello, *Nucl. Instr. Meth.*, **B36**(1989), 395.
- [9] 陈寿面、王震遐、潘冀生、郑里平, 物理学报, **38**(1989), 1785.
- [10] P.Sigmund, *Phys. Rev.*, **184**(1969), 383; *Phys. Rev.*, **187**(1969), 768.
- [11] M.H. Shapiro and T.A. Tombrello, *Nucl. Instr. Meth.*, **B62**(1991), 35.
- [12] P.Sigmund, A. Oliva and G. Falcone, *Nucl. Instr. Meth.*, **194**(1982), 541.
- [13] G.Falcone and P.Sigmund, *Appl. Phys.*, **25**(1981), 307.
- [14] M.H. Shapiro, D.Y. Lo, P.K. Haif and T.A. Tombrello, *Nucl. Instr. Meth.*, **B13**(1986), 348.
- [15] Y. Yamamura and K. Muraoka, *Nucl. Instr. Meth.*, **B42**(1989), 175.
- [16] H.H. Anderson, B. Stenum, T. Srensen and H.J. Whitlow, *Nucl. Instr. Meth.*, **B6**(1985), 459.
- [17] 王震遐、潘冀生、陶振兰、章骥平、张慧明、张伟坪、卢兆伦, 物理学报, **40**(1991), 316.
- [18] Wang Zhenxia, Pan Jisheng, Zhang Jiping and Tao Zhenlan, *Nucl. Instr. Meth.*, **B74** (1993), 380.
- [19] 王震遐, 物理学报, **43**(1994), 161.

SPUTTERING ON Ag SURFACE BOMBARDED BY $^{28}\text{Si}_n^- (n=1,2)$

WANG ZHEN-XIA PAN JI-SHENG ZHANG JI-PING TAO ZHEN-LAN DU GUANG-TIAN
(*Institute of Nuclear Research, Academia Sinica, Shanghai 201800*)

WANG CHUAN-SHAN LI XIN-NIAN XIE YI-FEN
(*Shanghai University of Science and Technology, Shanghai 201800*)
(Received 8 April 1994)

ABSTRACT

The angular distribution of sputtered atoms of Ag target bombarded by $^{28}\text{Si}_n^- (n=1,2)$ is measured using collection film technique combined with Rutherford backscattering spectroscopy. The experimental results show that the angular distribution of Ag atom induced by $^{28}\text{Si}_1^-$ is enhanced as compared with that by $^{28}\text{Si}_2^-$ in small ejecting angle θ . Combined with the analysis of target surface examined by scanning electron microscopy, we consider that this change of angular distributions may be indicate the influence of target surface topographical features.

PACC: 3640; 6180J; 6890