

MeV Si 离子轰击 SiO₂ 溅射行为研究*

薛建明^{1)†} 二宫 咎²⁾ 今西信嗣²⁾

¹⁾ (北京大学重离子物理研究所, 北京 100871)

²⁾ (日本京都大学核工程系)

(2003 年 7 月 3 日收到, 2003 年 8 月 6 日收到修改稿)

利用飞行时间谱仪(TOF)技术测量了 1—5MeV Si 离子轰击 SiO₂ 产生的 Si⁺ 二次离子动能分布和溅射产额. 实验发现, 当入射离子能量在 1—2MeV 时, 溅射产额随离子能量上升而下降, 这个趋势利用核溅射理论可以较好地解释; 当入射离子能量高于 3MeV 时, 溅射产额随离子能量上升而增加, 电子溅射机理开始占主要地位, 并且溅射规律与热峰模型的预期符合. 通过对实验结果的综合分析, 得到了重离子溅射 SiO₂ 的普适溅射产额公式.

关键词: 溅射, 溅射产额, 飞行时间谱仪, 动能分布

PACC: 6180J, 7920N

1. 引 言

当荷能重离子在固体中运动时, 通过与固体中的原子核(核能损)、电子碰撞(电子能损)等形式把自己的能量传递给靶物质. 当某个靶原子得到的能量足够高时, 就可以挣脱周围原子的束缚, 离开固体表面而成为溅射离子. 相应的过程称为核溅射和电子溅射. 目前, 离子溅射效应已经广泛应用在现代工业和科学研究中, 例如半导体工业、表面分析技术以及空间技术等. 研究荷能离子对固体的溅射机理, 对于离子和固体相互作用理论以及核技术实际应用都具有重要意义.

SiO₂ 具有优良的物理和化学性质, 应用范围非常广阔, 尤其是在微电子工业中占有重要地位. 虽然重离子溅射 SiO₂ 的研究已经有很长的历史, 但是大多数研究集中在低能区($< 0.1\text{MeV}$)^[1,2], 相关的机理也比较清楚. 在低能离子轰击时, 溅射产额(Y)和核能损(S_n)具有正比关系, 溅射离子的动能分布(KED)符合核溅射理论的描述. 也有一些工作报道了在高能($> 10\text{MeV}$)重离子轰击下 SiO₂ 的溅射行为^[3-5], 发现高能离子的溅射产额远高于低能离子, 并且与离子的电子能损 S_e 相关, 而与核能损 S_n 没

有明显关系. 但是由于实验数据比较少, 使得高能离子溅射 SiO₂ 的机理和规律还没有清楚的认识. 至于 1—10MeV 的重离子对 SiO₂ 的溅射现象, 由于相关实验结果非常少, 并且溅射过程比较复杂, 目前还没有进行很好的研究. 如果能够得到足够的中能离子溅射结果, 就可以对重离子溅射 SiO₂ 过程有一个全面的认识, 这对于相关的机理研究和实际应用都是很有意义的.

基于上述考虑, 我们利用飞行时间谱仪的方法测量了中能(1—5MeV) Si 离子溅射 SiO₂ 的溅射产额变化规律和溅射二次离子动能分布. 结合其他人的实验结果, 给出了适用于重离子对 SiO₂ 的普适溅射产额公式, 并对相关溅射机理进行了讨论.

2. 实验描述

溅射二次离子质谱实验是利用京都大学量子科学工程中心(QSEC)的 TOF 装置进行的. 所用 Si 离子束由一台 1.7 MV 的倍压加速器提供. 脉冲化后的束流宽度为 50ns, 频率为 10⁶ Hz. 实验过程中, 系统真空保持在 4×10^{-6} Pa 以上. 测量开始之前利用离子束对样品进行至少 30min 的溅射清洗, 以清除样品表面的污染原子层. 关于实验装置的详细介绍见

* 国家自然科学基金(批准号:19890300 和 10375005)资助的课题.

† E-mail: jmxue@pku.edu.cn, 电话: 010-62758494.

文献 [6, 7].

实验中入射离子的能量在 1—5MeV 之间, 样品上的离子束斑直径为 3mm, 束流强度约为 10nA. 所用的样品为硅基体上生长的 SiO_2 薄膜, 厚度为 400nm, 这个厚度可以保证实验过程中在样品表面不出现电荷积累现象.

3. 实验结果和讨论

图 1 给出了 3MeV 离子轰击样品时得到的二次离子质量分布. 可以看出, 当重离子轰击 SiO_2 时, 溅射出来的离子种类很多, 包括 Si^+ , Si^{2+} 以及 Si_xO_y^+ 团簇等等. 我们选择 Si^+ 来进行研究. 根据二次离子产生理论^[8], Si^+ 的产额 $Y(\text{Si}^+)$ 与总溅射产额 Y 之间成正比关系: $Y \propto Y(\text{Si}^+)$. 他们随离子能量的变化规律是相同的, 因此可以利用 Si^+ 的产生规律来代表总溅射产额的变化趋势.

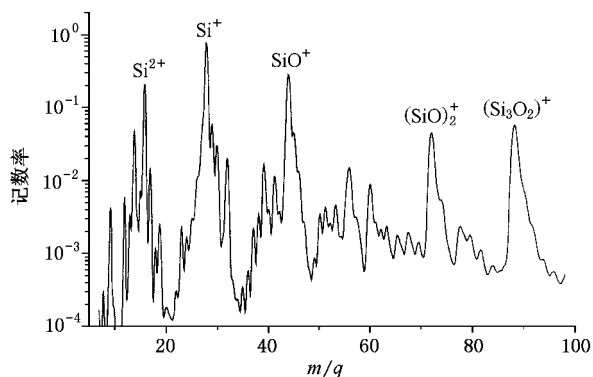


图 1 3MeV Si 离子轰击 SiO_2 产生的二次离子质谱

图 2 是溅射产额随入射离子能量上升而变化的曲线, 可以看到, 入射离子能量比较低时, 溅射产额随入射离子的能量上升而降低, 并在 2.5MeV 左右时达到最低. 随后, 随入射离子能量的进一步增加, 它开始迅速上升.

一般来讲, 当入射重离子能量比较低时 ($< 1\text{MeV}$) 核能损作用明显, 溅射离子主要是通过核能损过程产生的. 这时的溅射过程可以利用核溅射理论来描述^[9]. 当入射离子的能量很高时 ($> 10\text{MeV}$), 入射离子的核能损变得很小, 远远底于电子能损, 溅射过程也主要由电子能损过程决定, 而核溅射基本可以忽略. 目前, 已经有很多理论模型被用来解释电子溅射过程, 比较流行的有热峰模型^[10, 11]、压力波模型^[12]、库仑爆炸^[13, 14]、击打模型^[15]等等. 这些模型都

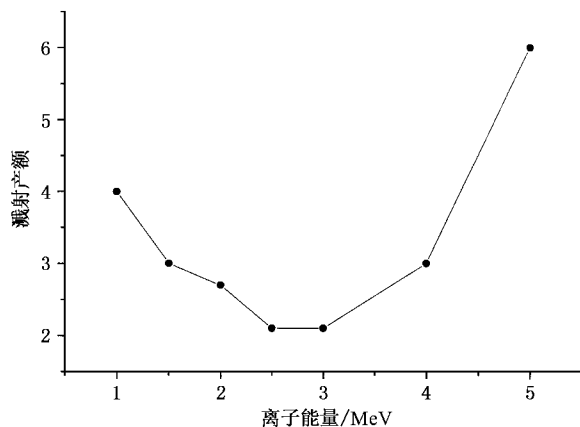


图 2 离子轰击 SiO_2 时离子能量对溅射产额 Y 的影响

能在一定程度上解释电子溅射的一些特殊现象, 但是往往会与其他的一些实验结果矛盾, 因此目前还没有公认的相关理论.

表 1 TRIM 程序计算得到的不同能量 Si 离子在 SiO_2 中的核能损 S_n 和电子能损 S_e .

能量/MeV	1	1.5	2	2.5	3	4	5
S_n (eV/nm)	83	62	50	42	37	30	25
S_e (eV/nm)	1000	1411	1766	2100	2321	2701	2960

1—5MeV 硅离子在样品中的 S_e, S_n 如表 1 所示. 从表中可以看出, 入射离子的核能损随能量的增加而降低. 由于核碰撞引起的溅射产额与 S_n 成正比^[9], 所以当入射离子能量从 1MeV 开始上升后, 核溅射过程渐渐减弱, 由此而产生的溅射离子渐渐减少. 在 1—3MeV 能区, 由于离子 S_e 小, 电子溅射不明显, 因此 Y 也随能量上升而降低. 当入射离子能量进一步提高时, Y 并没有随 S_n 的降低继续下降, 而是开始逐渐增加. 这主要是电子溅射机理的作用逐渐变强, 这时的溅射离子主要来自电子溅射过程. 由此增加的溅射离子数超过了由于 S_n 下降而减少的数目, 因此 Y 开始上升.

图 3 给出了测量得到的 1MeV, 3MeV, 5MeV 入射离子轰击下 Si^+ 二次离子的动能分布. 为了方便比较, 各个能谱用最高记数进行了归一化处理. 可以看到, Si^+ 的动能分布在入射离子能量上升时变窄, 平均动能逐渐降低. 1MeV 时的能谱可以利用 Thompson 分布来描述, 是典型的核溅射离子分布. 当能量上升为 5 MeV 时, 溅射离子的能谱则是趋向于高斯分布, 与热峰模型的预期结果比较符合^[16].

3MeV 离子所溅射出来 Si⁺ 离子的能谱是上述两种能谱的叠加,因此能量分布以及平均能量均介于二者之间. Si⁺ 离子动能分布的变化,也表明了当入射离子的能量从 1 MeV 增加到 5 MeV 的过程中,离子的溅射机理发生了明显的变化.

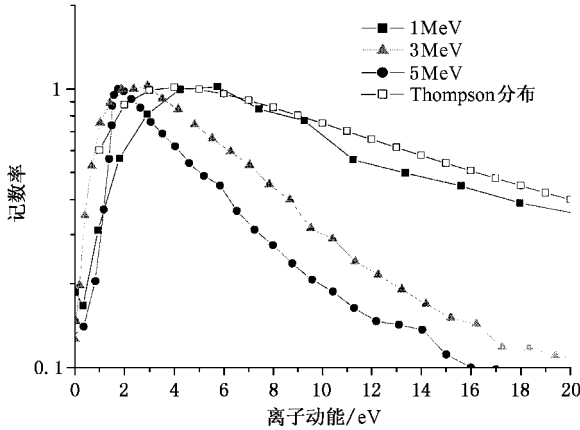


图3 不同能量离子轰击时溅射离子 Si⁺ 的动能分布

4. 重离子溅射 SiO₂ 普适溅射产额公式

一般说来,核溅射过程在 10⁻¹⁴ s 之内就结束了,而电子溅射过程则需要 10⁻¹¹ s 左右^[17],因此这两个过程在时间上是相互独立的,相互之间的影响不会太大.因此,溅射产额可以认为是它们各自贡献的线形叠加

$$Y = Y_{sn} + Y_{se}. \tag{1}$$

根据核溅射理论,由核能损产生的溅射产额与入射离子在样品中的核阻止本领 S_n 成正比^[9]:

$$Y_{sn} = K_{sn} \cdot S_n \cdot \alpha, \tag{2}$$

K_{sn} 是一个与材料性质密切相关的系数,α 是与入射离子和靶原子质量比有关的参数.

另一方面,尽管目前关于电子溅射有许多不同的理论模型,但是这些模型都认为溅射产额与入射离子的电子阻止本领 S_e 有如下的指数关系:

$$Y_{se} = K_{se} \cdot S_e^n, \tag{3}$$

K_{se} 是与材料性质相关的参数.不同模型之间的差别主要在于给出不同的 n 值.其中热峰模型中 n 为 2.5—3^[10,11],库仑爆炸模型为 2^[18],压力波模型为 3^[12],击打模型为 1.5^[15].

于是,荷能重离子轰击 SiO₂ 时,溅射产额可以用以下公式表示:

$$Y = K_{se} \cdot S_e^n + K_{sn} \cdot S_n \cdot \alpha. \tag{4}$$

为了得到上述公式中的系数,我们首先利用(2)式对其他文献中有关低能离子溅射产额的数据进行拟合^[12].对低能离子来讲,由于 S_e 很小,因此电子溅射过程可以忽略.通过拟合这些数据,得到 K_{sn} 大约为 0.057,拟合结果如图 4 所示.

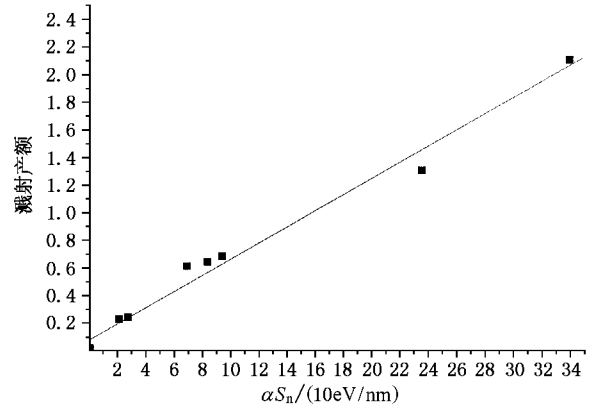


图4 低能重离子轰击 SiO₂ 时 Y 与 S_n 的关系

然后再利用(4)式和上述 K_{sn} 值,对本文实验数据和 Meins 等人的数据进行拟合^[3-5],结果如图 5 所示.最后得到 K_{se} 值为 2.5 × 10⁻⁸, n 为 2.7.

于是我们得到了在整个能量区间描述重离子溅射 SiO₂ 的产额的公式为

$$Y = 2.5 \times 10^{-8} \cdot S_e^{2.7} + 0.057 \cdot S_n \cdot \alpha. \tag{5}$$

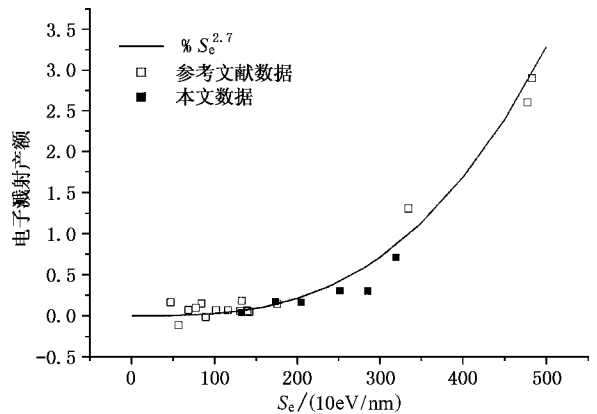


图5 中、重离子轰击 SiO₂ 时 Y_{se} 与 S_e 的关系

从拟合结果可以看出,Y 和 S_e 之间具有 2.7 幂的关系,这与热峰模型的预期基本一致.另外,如前所述,热峰模型也比较好的解释了溅射离子的动能分布和平均动能,而库仑爆炸等模型给出的溅射离子平均动能远远大于实验中测量到的值^[18,19].综合

这些结果,我们认为热峰模型更适合用来描述重离子轰击 SiO_2 时的电子溅射过程.

5. 结 论

利用飞行时间谱仪技术测量了 1—5 MeV Si 离子轰击 SiO_2 产生的二次离子能谱和溅射产额. 这些结果表明,当入射离子的能量从 1 MeV 增加到 5 MeV 的过程中,离子的溅射机理发生了明显的变

化. 完成了以核溅射过程为主到以电子溅射过程为主的转换. 在 1—2 MeV 时 SiO_2 的溅射过程可以利用核溅射理论来解释,高于 4 MeV 时的溅射过程则比较符合热峰模型的预言. 而在此之间的中间能量区域,这两种溅射机理是同时存在并且两种机理的作用都比较明显,任何一个都不能忽略.

结合其他实验数据,得到了重离子轰击 SiO_2 溅射产额的普适计算公式.

-
- [1] Jacpnsson H and Holmen G 1993 *Nucl. Instr. Meth.* B **82** 291
- [2] Sufden S, Sofield C J and Murrell M P 1992 *Nucl. Instr. Meth.* B **67** 569
- [3] Meins C K, Griffith J E, Qiu Y, Mendenhall M H, Seiberling L E and Tombrello T A 1983 *Rad. Eff.* **71** 13
- [4] Qiu Y, Griffith J E, Meng W J and Tombrello T A 1983 *Rad. Eff.* **70** 231
- [5] Sugden S, Sofild C J and Murrell M P 1992 *Nucl. Instr. Meth.* B **67** 596
- [6] Imanishi N, Shimizu A, Ohta H and Itoh A 1999 *Applications of Accelerators in Research and Industry*, edited by J. L. Duggan and I. L. Morgen, 396
- [7] Ninomiya S, Gomi S, Xue J, Imai M and Imanishi N 2000 *Applications of Accelerators in Research and Industry*, edited by J. L. Duggan and I. L. Morgen
- [8] Xue J M and Imanishi N 2002 *Chin. Phys.* **11** 1267
- [9] Sigmund P 1981 *Sputtering by Particle Bombardment I* (Berlin Springer) 1981
- [10] Toulemonde M, Dufour C and Paumier E 1992 *Phys. Rev.* B **46** 14362
- [11] Meftah A, Brisard F, Costantini J M, Dooryhee D, Hage-Ali M, Hervieu M, Stoquert P, Studer F and Toulemonde M 1994 *Phys. Rev.* B **49** 12457
- [12] Hohnson R E, Sundqvist B, Heidin A and Fenyo D 1989 *Phys. Rev.* B **40** 49
- [13] Dunlop A, Lesueur D and Dural J 1989 *Nucl. Instr. Meth.* B **42** 182
- [14] Dunlop A, Lesueur D, Morillo J, Dural J, Sphor R and Vetter J 1990 *Nucl. Instr. Meth.* B **48** 419
- [15] Heidin A, Hakansson P, Sundqvist B and Johnson R 1995 *Phys. Rev.* B **31** 1780
- [16] Bringa E M and Johnson R E 1998 *Nucl. Instr. Meth.* **143** 513
- [17] Wang Z G, Dufour C, Paumier E and Toulemonde M 1994 *J. Phys. Matter.* **6** 6733
- [18] Brown W, Augstyniak W, Brody Em and Cooper B 1980 *Nucl. Instr. Meth.* B **170** 321
- [19] Cheng H P 1997 *Phys. Rev.* B **55** 2628

Study on the sputtering mechanism of SiO₂ irradiated with MeV Si ions^{*}

Xue Jian-Ming^{1,2)†} S. Ninomiya²⁾ N. Imanishi²⁾

¹⁾(*Institute of Heavy Ions Physics , Peking University , Beijing 100871 , China*)

²⁾(*Nuclear Engineer Department , Kyoto University , Japan*)

(Received 3 July 2003 ; revised manuscript received 6 August 2003)

Abstract

Sputtering yield and kinetic energy distribution (KED) of Si⁺ from the SiO₂ sample bombarded with 1—5 MeV Si ions were measured with a conventional time of flight (TOF) facility. The results show that the sputtering yield decreases when the ion energy increased from 1 to 3 MeV , and then it increases quickly if the ion energy is further increased. However , the average kinetic energy of the sputtered secondary ions always drops while the incident ion energy is increased. These phenomena can be explained by the mixture of the nuclear sputtering and the electronic sputtering processes. With the experimental data obtained in this study , and the data from other papers , a general function for calculating the total sputtering yield for heavy ions bombarding SiO₂ has been derived.

Keywords : sputtering , TOF , KED , yield

PACC : 6180J , 7920N

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19890300 and 10375005).

[†] E-mail : jmxue@pku.edu.cn ; Tel 010-62758494.