

# 用离子束溅射方法制备的钛薄膜表面形貌分析

齐红基 程传福 袁景梅 邵建达 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:** 用离子束溅射工艺在 K9 玻璃基片上沉积 Ti 薄膜,并用原子力显微镜对其表面形貌进行测量,通过数值相关运算,发现在此工艺条件下薄膜生长界面为各向同性的自仿射分形表面,并用粗糙指数、横向相关长度和标准偏差粗糙度对薄膜样品表面进行定量描述。利用自仿射分形表面的相关函数对数值运算的结果进行拟合,得出 Ti 薄膜生长界面的粗糙度指数  $\alpha=0.72$ ,相应的分形维数  $D_f=2.28$ ,并由此得到在离子束溅射工艺下 Ti 薄膜属于守恒生长的结论,其生长动力学过程可用 Kuramoto-Sivashinsky 方程来描述。

**关键词:** 薄膜光学; 离子束溅射; 钛; 薄膜; 自仿射分形

中图分类号: O484.4<sup>-1</sup> 文献标识码: A

## 1 引 言

钛及其合金具有强度高、耐腐蚀性好等优点,是军事及航空航天工业等领域中的重要材料。钛薄膜作为二维材料,有许多不同于其体材料的性质,对于钛薄膜的制备及其性能的研究都还有待于进一步的深入。众所周知,薄膜生长是大量原子或原子团在基片上沉积的过程,直接对薄膜生长动力学的研究是非常困难的。由于薄膜生长界面的形貌是其生长动力学过程最直观地反映,近几年来,人们通过对薄膜生长界面演化在研究薄膜生长动力学过程方面做了许多工作,并根据不同的界面形貌类型提出了各种薄膜生长模型。其中用动态标度方法<sup>[1,2]</sup>把生长界面的形貌和对应的生长模型联系起来,在描述界面演化方面取得了重要进展。

对生长界面形貌的标定常用的方法有接触法,如扫描探针显微镜(SPM)<sup>[3,4]</sup>、轮廓仪<sup>[5,6]</sup>等,非接触法,如光散射<sup>[7~9]</sup>、高分辨率低能电子衍射(HRLEED)<sup>[10]</sup>等。在扫描探针显微术中原子力显微镜(AFM)使用最为简单方便,应用也最为广泛,在研究薄膜生长及其表面形貌演化中发挥了重要作用。但多数文献对于原子力显微镜测量的生长界面形貌研究一般只局限于定性分析,主观判断界面的特性,使原子力显微镜测量的优势难以得到充分的发挥<sup>[10~12]</sup>。近几年来,随着对薄膜生长动力学和生

长界面形貌研究的不断深入,在利用原子力显微镜获得图像高度数据对表面形貌进行完全定量地研究方面已做了一些有益的探索和尝试,并促进了对薄膜生长机理进一步认识<sup>[14~17]</sup>。但是,对于离子束溅射工艺条件下 Ti 薄膜生长界面形貌和生长模型研究的报道还不多见。

本文在离子束溅射工艺条件下制备金属 Ti 薄膜,利用原子力显微镜对其表面形貌进行测量,对得到图像的高度数据进行傅里叶变换和数值相关运算来定量地研究薄膜生长界面的形貌特征,发现了离子束溅射工艺条件下生长的 Ti 薄膜界面为自仿射分形随机表面,这表明在本文的实验条件下, Ti 薄膜的生长属于自仿射分形生长。我们根据自仿射分形表面的高度-高度相关函数,对高度数据进行相关运算后得到的数值进行拟合,获得了对 Ti 薄膜界面进行定量描述的粗糙指数  $\alpha$ 、横向相关长度  $\xi$ 、标准偏差粗糙度  $\omega$  等参量。其中粗糙度指数  $\alpha=0.72$ ,从而得到 Ti 薄膜生长界面的分形维数  $D_f=2.28$ 。结合薄膜的生长模型,得出了在离子束溅射工艺条件下薄膜生长属于守恒生长,并可用 Kuramoto-Sivashinsky 方程来描述的结论。

## 2 Ti 薄膜的离子束溅射沉积与形貌测量

图 1 是制备 Ti 薄膜样品所用的离子束溅射沉积系统示意图。Kaufman 型离子源(Kaufman-type ion source)产生的氩离子束用中和器产生的电子中和后,以  $45^\circ$ 角入射到 Ti 靶上,溅射出 Ti 原子或原

E-mail: qhj@mail.siom.ac.cn

收稿日期:2002-05-05; 收到修改稿日期:2002-06-26

子团沉积在基片上形成薄膜。在实验中,扩散泵抽运的真空室直径为 400 mm, Kaufman 型离子源的口径为 100 mm, 为宽束聚焦离子源, 焦距为 150 mm, 输出离子能量可达 1500 eV, 束流可达 150 mA。Ti 靶固定在水冷工作台上。基底材料为 K9 玻璃, 为改善薄膜的均匀性, 在镀膜过程中基片是旋转的。

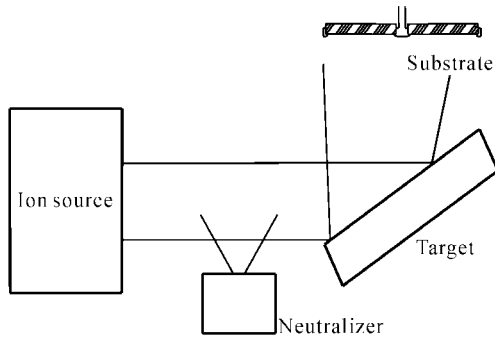


Fig.1 Schematic diagram of ion beam sputtering deposition system

在制备薄膜前, 先将本底真空抽到  $1 \times 10^{-3}$  Pa 以下, 然后向离子源注入工作气体氩气, Ar 的压强为  $1 \times 10^{-2}$  Pa。调整沉积离子源的工作参量, 使溅射离子能量为 700 eV, 相应的离子束流为 44 mA, 薄膜生长时间为 60 min。在制备 Ti 薄膜的过程中, 基片不加热, 基片温度较低(小于  $60^\circ\text{C}$ ), 形成了非晶态的薄膜样品。

我们对制备的 Ti 薄膜样品用 Park 公司 AutoProbe CP 型原子力显微镜进行了表面形貌测量, 采用接触模式, 探针的类型为 UL06, 该探针针尖直径为 10 nm, 边角为  $10^\circ$ 。图 2 为原子力显微镜下薄膜的表面形貌, 扫描成像范围为  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ , 成像的数据点阵为  $256 \times 256$ , 图 3 给出了扫描范围为  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$  的该样品的原子力显微镜形貌图像, 数据点阵也是  $256 \times 256$ 。图 4 给出了图 2 的形貌图中某一横截面的高度曲线。由图 2、图 3 和图 4

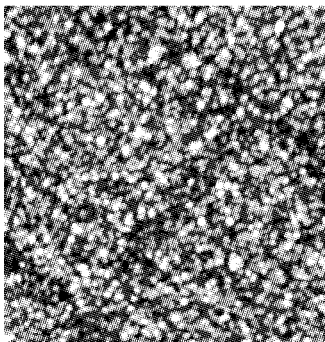


Fig.2 AFM image ( $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ )

可以看出两点: 1) 薄膜表面有不同尺度的颗粒, 且在一定的尺度范围之内, 各种不同大小的颗粒均匀分布在表面上; 2) 在大尺度的高度起伏或颗粒上, 有小尺度的颗粒或高度调制, 且这些小的颗粒或高度调制无特征大小。以上两点使得薄膜表面在一定的尺度范围内具有很明显的分形特征, 并且这种特征可以用自仿射分形模型来描述。

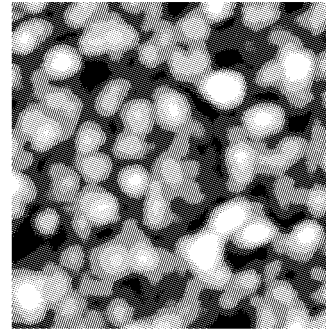


Fig.3 AFM image ( $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ )

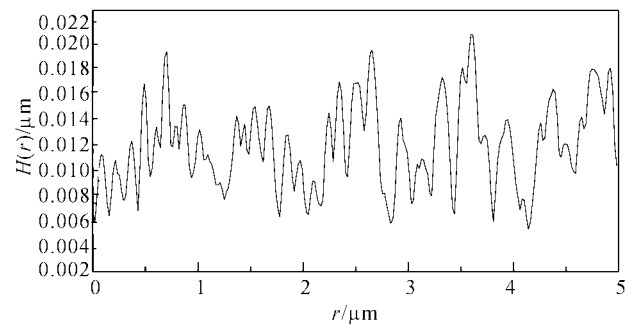


Fig.4 1D cross section scan of surface profile

Ti 薄膜生长界面这一形貌特征的形成, 是由其生长动力学过程所决定的。在入射氩离子的作用下, Ti 原子或原子团脱离靶表面在基片上随机沉积, 沉积在基片上的原子或原子团也可能从基片上脱浮。原子或原子团的沉积与脱浮具有一定的几率, 是动态的平衡过程。在离子束溅射沉积 Ti 薄膜时, 沉积在基片上的原子或原子团具有较高的能量, 可以在沉积点附近局部区域扩散。因此, 在沉积薄膜的过程中, 存在着原子团的聚合与分离。当沉积在基片上的原子团尺度小于成核的临界半径时, 原子或原子团是不稳定, 可能从表面上脱附。当原子团的尺度大于成核的临界半径时, 形成了稳定的结构。随着原子或原子团的继续沉积, 聚集的原子或原子团越来越多, 形成的核尺度也越来越大。从整个基片来看, 存在着一个个孤立的小岛。当岛的尺度到一定程度时, 所有小岛连成一片, 在基片上沉积了一层薄膜, 但薄膜的表面不平整。沉积薄膜表面

的原子或原子团也可能因为扩散效应成为新的核, 聚集原子或原子团, 形成小尺度的岛。在薄膜的形貌上看, 就是一些大的颗粒上有一些小的颗粒或高度调制, 从而使其生长界面呈自仿射分形特征。

### 3 薄膜表面定量描述与生长模型初探

为了了解薄膜表面的基本统计特性, 我们首先由原子力显微镜图像的高度数据, 对样品的高度概率分布进行了计算。图 5 的点画曲线给出了得到的直方计数图, 实线为高斯拟合曲线。两者吻合得很好, 说明薄膜样品表面为高斯型随机表面。图 6 是由图 2 的图像数据作傅里叶变换得到的灰度图, 可以看出, 傅里叶变换图像在各个方向上亮度分布大致相同, 这说明薄膜表面的形貌为各向同性的。

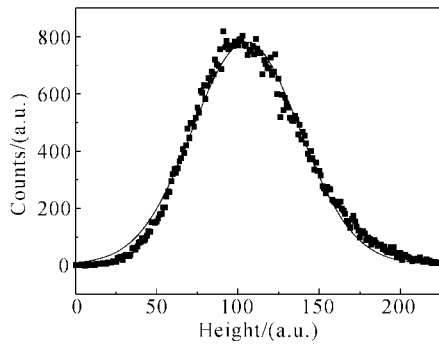


Fig. 5 The surface height histogram for the Titanete thin films obtained by AFM and its Gaussian fit

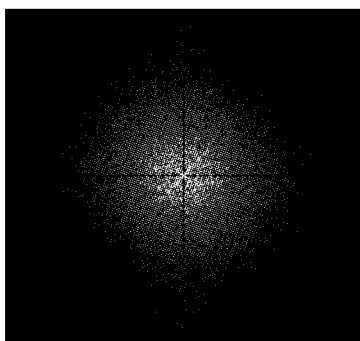


Fig. 6 The Fourier transform of the surface height

表面高度自相关函数可以对表面结构的统计进行更加细致描述的, 其定义为

$$R_h(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}) = \langle h(\mathbf{r})h(\mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}) \rangle, \quad (1)$$

其中  $\langle \rangle$  表示系综平均,  $h(\mathbf{r})$  为生长界面上平面坐标为  $\mathbf{r}$  点处位置上的高度,  $\boldsymbol{\rho}$  为相关的空间间隔。在以下的运算中, 我们取平均高度处的平面为参考平面, 即取  $\langle h(\mathbf{r}) \rangle = 0$ 。

对表面结构统计特性的另一种描述是其高度-

高度相关函数  $H(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho})$ , 其定义为

$$H(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}) = 2[\omega^2 - R_h(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho})] = \langle [h(\mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}) - h(\mathbf{r})]^2 \rangle, \quad (2)$$

其中  $\omega = [R_h(\mathbf{r}, \mathbf{r})]^{1/2} = \langle h(\mathbf{r})h(\mathbf{r}) \rangle^{1/2}$  为表面的标准偏差粗糙度。由前面的原子力显微镜图像及讨论可知, Ti 薄膜的生长界面可以看作是各向同性和各态历经的平稳随机过程, 因此和表面高度相关的各种统计量的系综平均等于空间平均, 并且它们与位置坐标  $\mathbf{r}$  无关。所以高度-高度相关函数只与两点的位置差  $\boldsymbol{\rho}$  的大小  $\rho$  有关, 则有

$$H(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}) = H(\rho) = \langle [h(\rho) - h(0)]^2 \rangle. \quad (3)$$

在 Ti 薄膜生长过程中, 有两种机制——沉积过程中的随机噪声和局部区域的平滑效应同时对薄膜形貌的形成和演化起作用。被氩离子从靶材溅射出来的 Ti 原子或原子团在基片上随机沉积, 沉积在基片上的原子和原子团也可能在随后的沉积过程中脱离基片, 整个沉积过程是随机的。这种随机噪声是表面高度变化和粗糙化的主要原因。而在离子束溅射工艺条件下, 被溅射出的原子或原子团具有较大的能量, 它们在基片沉积后, 在沉积点附近的局部区域内调整位置, 寻找能量的最低点, 这使得表面的局部区域趋于平滑。在生长过程中, 由于随机噪声在比较大的区域即长程范围内起作用, 而平滑效应只能在局部区域即短程范围内有效。这两种竞争机制只有在短程内可以达到平衡, 在长程范围内不可能达到平衡, 所以在短程的范围内可以用不随时间变化的表面参量——粗糙指数  $\alpha$  来描述, 表现为表面形貌自相似的随机分形特征。在长程范围内, 整个界面的形貌和粗糙度随着时间而不断的变化。因此对于自仿射分形表面, 可以采用动态标度假设, 其高度-高度相关函数为

$$H(\rho) \sim \begin{cases} C\rho^{2\alpha}, & \rho \ll \xi \\ 2\omega^2, & \rho \gg \xi \end{cases} \quad (4)$$

其中  $\xi$  为表面的横向相关长度,  $\alpha$  取值在 0 到 1 之间, 它与表面分形维数之间的关系为  $\alpha = d - D_f$ , 这里  $d$  为表面所嵌入空间的维数。 $\alpha$  值越小, 表示表面局域高度变化越剧烈, 分形特征越明显。在  $\rho \ll \xi$  时,  $H(\rho)$  正比于  $\rho^{2\alpha}$ , 因此, 在指数-指数坐标中, 该区域内  $H(\rho)$  的图形应为一一直线, 直线的斜率为  $\alpha$ , 当  $\rho \gg \xi$  时,  $H(\rho)$  趋于常量  $2\omega^2$ 。得到 Ti 薄膜样品的高度-高度相关函数, 并由此求出  $\alpha$ 、 $\xi$  和  $\omega$  是对其生长界面进行全面定量描述的关键。

首先计算标准偏差粗糙度  $\omega$ , 其定义式为

$$\omega = [R_h(\mathbf{r}, \mathbf{r})]^{1/2} = \langle h(\mathbf{r})h(\mathbf{r}) \rangle^{1/2}. \quad (5)$$

对于图 2, 图像的高度数据是离散的, 此时,

$$\omega^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N h_i^2,$$

由于数据点阵为  $256 \times 256$ , 取  $N = 65536$ ,  $\omega = 4 \text{ nm}$ 。

根据定义式(3)式, 对 Ti 膜表面数据进行高度-高度数值相关运算。从上面分析可以看出, 薄膜表面是各向同性的, 可以沿着水平方向某一条线做高度-高度相关。对于离散的高度数据, 高度-高度相关  $\langle H(md) \rangle_N$  由下列公式求出

$$\langle H(md) \rangle_N = \frac{1}{N-m} \sum_{i=1}^{N-m} [h_{i+m} - h_i]^2, \quad (6)$$

其中,  $d$  为扫描线上相邻两个离散数据点之间的距离。对于有限的数据点, 当  $m$  变大时, 可以平均的数据变少, 特别是当  $m = N - 1$  时, 只有一个数据可平均, 统计平均性差。由于采集的数据点阵为  $256 \times 256$ ,  $N = 256$ , 取  $m = 100$ 。为了扩大可以平均的点数, 对每一条水平线做相关运算后, 再对 256 条线求平均。

在指数坐标下, 对图 2 的高度数据进行高度-高度相关运算后得到的函数  $H(\rho)$  的数值在图 7 由点画曲线给出。可以看出, 当  $\rho$  较小时, 该曲线是呈线性变化的, 此线性段的斜率即为  $2\alpha$ 。用直线来拟合图 7 中的线性段, 可以得到  $\alpha = 0.72$ 。当  $\rho$  较大时,  $H(\rho)$  基本上趋于常量, 不随  $\rho$  的变化而变化。对于自仿射分形和各向同性表面, 高度-高度相关函数  $H(\rho)$  和自相关函数  $R_h(\rho)$  可以唯象的表示为<sup>[9]</sup>

$$H(\rho) = 2\omega^2 \{1 - \exp[-(\rho/\xi)^{2\alpha}]\}, \quad (7)$$

$$R_h(\rho) = \exp[-(\rho/\xi)^{2\alpha}]. \quad (8)$$

固定  $\alpha, \omega, \xi$  作为变量, 在指数坐标下, 用上式给出的  $H(\rho)$  对由运算得到的高度-高度相关的数值曲线进行拟合, 从而得到 Ti 膜表面的横向相关长度  $\xi = 60 \text{ nm}$ 。拟合曲线也在图 7 中由实线给出。

至此, 通过数值相关运算, 用  $\alpha, \xi, \omega$  对离子束溅射工艺条件下 Ti 薄膜的生长界面做了定量的描述。在短程范围内, 决定薄膜表面形貌的两种竞争机制——随机噪声和平滑效应可以达到平衡, 表现为表面形貌自相似的随机分形特征, 可以用不随时间变化的表面参量——粗糙度指数  $\alpha$  来描述。对于自仿射分形表面而言, 不同的  $\alpha$  值基本反映了薄膜生长过程中不同的动力学过程。在薄膜生长中, 根据不同的动力学过程, 人们提出了不同的生长模型, 本文通过数值相关运算和函数拟合, 得到  $\alpha = 0.72$ , 与数值模拟的 Kuramoto-Sivashinsky 模型<sup>[18]</sup>的初级阶段( $\alpha$  为  $0.75 \sim 0.8$ )非常吻合。因此, 在离子束溅射工艺条件下, Ti 薄膜的生长过程可以用

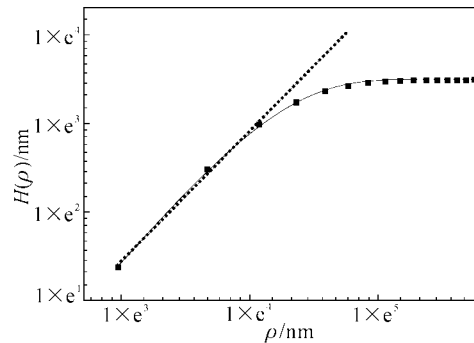


Fig. 7 The scattered data represent the height-height correlation functions calculated from the AFM image (Fig. 2). The thin dot line is the best linear fits, The solid curve is the best fits of  $H(\rho)$

Kuramoto-Sivashinsky 生长模型来描述。其方程形式为

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \gamma \nabla^2 h - \kappa \nabla^4 h + \frac{\lambda}{2} |\nabla h|^2 + \eta,$$

其中,  $\eta$  为薄膜生长过程中固有的随机噪声,  $\gamma \nabla^2 h$  和  $\frac{\lambda}{2} |\nabla h|^2$  是指在离子束溅射技术镀膜的过程中, 已经沉积在基片上的粒子在入射粒子的作用下从薄膜表面脱附而引起的生长界面变化,  $-\kappa \nabla^4 h$  表示沉积在基片表面的高能粒子在沉积点附近局部区域的扩散效应。

**结论** 非平衡条件下生长的薄膜, 在不同的粗糙化机理作用下, 主要形成了两种不同类型的表面——自仿射分形表面、岛状生长表面。用离子束溅射工艺制备的金属 Ti 薄膜, 随机噪声是生长界面粗糙化的主要原因, 形成了自仿射分形表面。对于自仿射分形表面, 可以用表面粗糙度指数  $\alpha$ 、横向相关长度  $\xi$  和标准偏差粗糙度  $\omega$  来定量描述。本文用原子力显微镜来测量 Ti 薄膜样品的表面形貌, 通过数值相关运算, 很容易得到金属 Ti 薄膜的  $\alpha = 0.72$ , 横向相关长度  $\xi = 60 \text{ nm}$ , 标准偏差粗糙度  $\omega = 4 \text{ nm}$ 。另外在不同条件下, 薄膜生长过程可以用不同的模型来描述, 如 EW 模型 (Edwards-Wilkinson model)、KPZ 模型 (Kardar-Parisi-Zhang model)、Mullins 扩散模型 (Mullins diffusion model) 等, 与各种生长模型相比, 在上述实验条件下, 金属 Ti 膜的生长可以用 Kuramoto-Sivashinsky 模型来描述。

## 参 考 文 献

- 1 Family F. Dynamic scaling and phase transitions in interface growth. *Phys. (A)*, 1990, **168**(1~3): 561~580

- 2 Godriche C. *Solids Far From Equilibrium: Growth Morphology and Defects*. New York: Cambridge University Press, 1991. 432, 479
- 3 Peto G, Molnar G L, Paszti Z *et al.*. Electronic structure of gold nanoparticles deposited on SiO<sub>2</sub>/x/Si (100). *Materials Sci. and Engng. (C)*, 2002, **19**(1~2):95~99
- 4 Notz R, Ziemann P, Koslowski Berndt. Epitaxial growth of iridium on strontium-titanate (0 0 1) studied by in situ scanning tunneling microscopy. *Surface Sci.*, 2002, **496**(3):153~159
- 5 Deincek A G, Tarasenko A A, Jastrabik L *et al.*. Ellipsometric study of W thin films deposited on Si. *Thin Solid Films*, 1999, **339**(1~2):216~219
- 6 Klett A, Freudenstein R, Plass M F *et al.*. Stress of *c*-BN thin films: A parameter investigation. *Surface and Coatings Technol.*, 1999, **116~119**:86~92
- 7 Ulyanenkov A, Matsuo R, Omote K *et al.*. X-ray scattering study of interfacial roughness correlation in Mo/Si multilayers fabricated by ion beam sputtering. *J. Appl. Phys.*, 2000, **87**(10):7255~7260
- 8 Chiarello R, Panella V, Krim J. X-ray reflectivity and adsorption isotherm study of fractal scaling in vapor-deposited films. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **67**(24):3408~3411
- 9 Sinha S K, Sirota E B, Garoff S. X-ray and neutron scattering from rough surfaces. *Phys. Rev. (B)*, 1988, **38**(4):2297~2331
- 10 He Y L, Yang H N, Lu T M *et al.*. Measurements of dynamic scaling from epitaxial growth front: Fe film on Fe(001). *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69**(26):3770~3773
- 11 Wang Zhuo, Sun Daliang, Hu Jifan *et al.*. The reactive ion etching of Bi<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> thin films on silicon substrates and its image in atomic force microscopy. *J. Crystal Growth*, 2002, **235**(1~4):411~414
- 12 Cheng Y H, Tay B K, Lau S P *et al.*. Influence of substrate bias on the structure and mechanical properties of ta-C: W films deposited by filtered cathodic vacuum arc. *Surface and Coatings Technol.*, 2001, **146~147**:398~404
- 13 Zhang R, Bhat I. Atomic force microscopy studies of CdTe films grown by epitaxial lateral overgrowth. *J. Electronic Materials*, 2001, **30**(11):1370~1375
- 14 Li Jianming, Lu Li, Su Ying *et al.*. Fractal-based description for the three-dimensional surface of materials. *J. Appl. Phys.*, 1999, **86**(5):2526~2532
- 15 Chan C T, Wang G C. Roughness evolution of Si(111) by low-energy ion bombardment. *Surface Sci.*, 1998, **414**(1~2):17~25
- 16 Freudenstein R, Klett A, Kulisch W. Investigation of the nucleation of *c*-BN by AFM measurements. *Thin Solid Films*, 2001, **398~399**:217~221
- 17 Saitou M, Chinen T, Odo Y. Schwoebel effect and dynamic scaling behavior in nickel film growth by electrodeposition. *Surface and Coatings Technol.*, 1999, **115**(2):282~284
- 18 Drotar J T, Zhao Y P, Lu T M *et al.*. Numerical analysis of the noisy Kuramoto-Sivashinsky equation in 2 + 1 dimensions. *Phys. Rev. (E)*, 1999, **59**(1):177~185

## Morphology Analysis of Titanic Thin Film Prepared by Ion Beam Sputtering

Qi Hongji Cheng Chuanfu Yuan Jingmei Shao Jianda Fan Zhengxiu  
 (Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy  
 of Sciences, Shanghai 201800)

(Received 5 May 2002; revised 26 June 2002)

**Abstract:** Titanic thin films have been prepared on K9 substrates by ion beam sputtering method. The surface morphology is studied by using atomic force microscopy (AFM). The images show that surface is isotropic and self-affine. The surface can be quantitatively described by the roughness exponent  $\alpha$ , the lateral correlation length  $\xi$ , and the interface width  $w$ . The value  $\alpha$  of the Ti film is measured to be 0.72, which gives the related local surface fractal dimension  $D_s = 2.28$ . From these values, it is suggested that the growth of Ti film is more consistent with a conservative growth process and can be described by using a noisy Kuramoto-Sivashinsky equation.

**Key words:** film optics; ion beam sputtering; titanium; thin films; self-affine