非平衡磁控溅射系统离子束流磁镜效应模型*

|牟宗信†|||李国卿||秦福文|||黄开玉|||车德良||

(大连理工大学三束材料改性国家重点实验室,大连 116024) (2004年6月28日收到2004年8月4日收到修改稿)

为了研究非平衡磁控溅射沉积系统的等离子体特性,采用常规磁控溅射靶和同轴约束磁场构成非平衡磁控溅 射沉积系统.在放电空间不同的轴向位置,Ar放电 0.2Pa和150V偏压条件下,采用圆形平面离子收集电极,测量不 同约束磁场条件下的饱和离子束流密度.研究结果表明,在同轴磁场作用下,收集电极的离子束流密度能达到饱和 值 9mA/cm² 左右,有利于在沉积薄膜的过程中产生离子轰击效应.根据磁流体理论分析了同轴约束磁场形成的磁 镜效应和对放电过程的影响机理.实验与模型计算结果的比较表明,模型从理论上表达了同轴磁场约束对非平衡 磁控溅射等离子体特性的影响规律.

关键词:等离子体,金属薄膜/非磁性,磁控溅射,磁镜 PACC:7360,5225,5270,5275

1.引 言

非平衡磁控溅射沉积技术在功能薄膜沉积方面 得到广泛应用 其沉积区域等离子体密度高于一般 的磁控溅射系统,有利于提高薄膜质量1-31,对常规 磁控溅射系统放电特性的研究虽然已经进行了许多 年[9-13] 取得了许多研究成果 但仍有一些基础问题 还不是很清楚 例如交叉场中电荷的霍尔运动对放 电过程形成的影响等,主要是由于放电空间存在复 杂的电场、磁场 放电过程中等离子体状态非常复杂 等因素.另外 数值模拟较大放电空间的等离子体状 态由于计算量较大,所以非常困难,目前,由于工业 应用和功能薄膜沉积机理研究等方面发展的需求, 关于非平衡磁控溅射系统放电特性的研究已经成为 热点[14,15].研究能够为实验提供参考的理论模型,具 有重要意义,目前关于非平衡磁控溅射沉积系统应 用的研究报道较多[1-7],但仍需要深入研究.文献 [14 采用 PIC/MC 方法模拟磁控溅射系统的放电特 性,但是不能反应非平衡磁控溅射系统的特性.文献 [15 采用泊松方程研究非平衡磁控溅射系统的放电 参数 考虑了系统中磁场空间结构对于沉积参数的 影响 但没有考虑空间的磁镜效应对于电荷分布和 迁移造成的影响,本文从实验和理论模型两方面研

究非平衡磁控溅射系统的放电特性.采用离子收集 电极,研究饱和离子束流密度与放电电流密度、同轴 磁场约束条件、空间位置之间的关系^[7];采用磁流体 理论方法,考虑系统中的磁镜效应,在实验的基础 上,建立反映等离子体特性的理论模型.分析结果表 明,模型的计算结果与实验参数符合很好.本文结论 对非平衡磁控溅射沉积系统的设计具有参考价值, 对于研究薄膜结构、性能和沉积参数之间定量控制 的关系也能提供参考^{16—19}].

2. 实验装置

圆形平面磁控溅射靶的直径为 \$95mm,内部磁 体采用 NdFeB 永磁材料.通过测量溅射刻蚀痕迹, 确定有效放电区域为 30cm² 左右.同轴约束线圈内 径和高度为 \$170mm × 60mm.采用特斯拉磁强计测 量阴极表面的磁感应强度.图 1(a)为从阴极溅射刻 蚀中心出发,平行于阴极表面的磁感应强度分布.图 1(b)为在阴极中心对称轴上和阴极表面垂直的磁感 应强度分布.实验中电源采用有过流保护的线性直 流电源,电压调整范围为 0—1000V,溅射靶电流调 节范围为 0—5A,循环水冷却磁控溅射靶.采用 ZDF II型真空计监控真空度,系统极限真空度为 5 × 10⁻³Pa.由气体质量流量计调节气体的流量.本文实

^{*} 国家自然科学基金(批准号 50407015)资助的课题.

[†]E-mail :mzongxin@dlut.edu.cn

验中阴极材料为纯金属钛(99.8%),放电气体为 Ar (99.99%),气体质量流量为 8.7sccm,放电气压为 0.2Pa.圆形平面离子收集电极的材质为纯铝,直径 为 80mm,除和阴极相对的收集表面外都采取屏蔽措 施^[9] 加 150V 负偏压以收集饱和离子电流.实验中 分别调节探针的位置、放电电流密度、约束磁场电流 等参数,等待放电系统稳定后测量数值.



图 1 不同电磁场激励电流条件下轴向磁场测量值 (a)为从磁控溅射靶刻蚀痕中心出发,平行阴极表面的磁感应强度分布 (b)为在阴极 轴心线上,垂直阴极表面的磁感应强度分布

3. 模型分析

在磁控溅射系统中,平行于阴极表面的磁场能 够约束二次电子,增加电荷密度^[9].从溅射刻蚀痕迹 中心出发测量,平行于阴极表面的磁场分布如图 1(a)所示.电子在洛伦兹力作用下沿磁力线运动,二 次电子越过阴极表面磁场后进入同轴约束磁场,离 子由于静电力的作用受到影响.放电空间中的磁场 梯度影响电荷空间分布和迁移率.

同轴约束线圈的电流变化时,平行于阴极的磁 场感应强度的相对变化较小,认为其不会显著影响 系统的放电特性.轴向磁场的分布如图 1(b)所示. 由同轴电磁线圈形成的同轴磁场弱于阴极表面磁 场,但其分布的空间尺度较大,所以同轴电磁线圈电 流的变化会显著影响系统的放电特性.同轴磁场的 磁极方向和溅射靶中心磁极的极性相反,两者相互 作用,在阴极前形成一个磁阱,在距离阴极约 z₀ ~ 50mm 的轴向位置形成一个磁感应强度的峰值.由 于磁镜效应,当电荷运动到 z_0 位置的两侧,会受到 力 $F_{//} = -\mu_{\perp} \nabla B$ 的作用,其中电子磁矩为 $\mu_{\perp} = W_{\perp}/B = \text{const.}, W_{\perp}$ 为电子绕磁力线的回旋动能, ∇B 为峰值的两侧形成极性相反的两种磁场梯度.

当 $z < z_0$ 时, $\nabla B < 0$,在阴极和 z_0 之间存在一 个势阱^[20],对于一般的放电情况,放电空间中磁场 感应强度达到 6×10^{-3} T 时,就能够显著影响等离子 体的空间分布状态和等离子体的电离状态,所以阴 极发射的二次电子进入这个势阱以后,受到阴极表 面的鞘层电场和磁场梯度的作用,低能电子在往返 运动中得到加速,直到获得能够越过磁镜的能量.同 轴磁场的电流改变时,系统的放电特性也会发生变 化^[8],随阴极电压的升高,当阴极区域电子温度达到 放电气体的电离能(对于 Ar,电离能为 15.775eV) 时,放电进入饱和离化放电状态.当电子运动到 $z > z_0$ 的位置时, $\nabla B > 0$,电子受到一个由强磁场区指 向弱磁场区力的作用,形成一个等效的电场, $E_{//}$ = *F*_{//}/*e*,其中 *e* 为电子电荷,磁镜效应带来的等效电场会影响离子束流的空间分布,本文采用磁流体方程分析其影响的过程²¹.

分析中使用准中性条件为 $n_i \approx n_e \approx n$,电子能 量分布为麦克斯韦分布 放电处于稳定状态(Ou/Ot =0)离子温度和中性粒子相同(300K).由于电子质 量远小于离子质量 运动速度快于离子 近似认为等 离子体中的电流是由电子迁移形成的,考虑阴极表 面磁场对电荷分布密度的影响^{22]}在低气压放电条 件,近似忽略电子的扩散效应,以及由于碰撞造成的 电离、复合作用、根据非平衡磁控溅射放电系统的轴 对称特征,采用一维(z轴)近似,为分析方便,假设 空间电场 $E = V(z - d_0)$,其中 V 为阴极电压 ,z 为 放电空间的坐标, do 为阴极表面平行磁场作用区 域.定义磁镜比为 $R_{\rm m} = B_{s0}/B_{\rm min}$,其中 B_{s0} 为在 z_0 处 的磁场值, 周, 为磁镜中磁场感应强度的最小值,本 文中近似为 $B_{min} \approx 6 \times 10^{-4}$ T. 电子的回旋动能根据 文献 23 近似表达为 $W_{\perp \infty} T_{e}$,电子温度一般和空 间电场成正比 ,即有 T_a ∝ E ,计算中电子磁矩状态 的公式为 $\mu_{\parallel} = \alpha k T_{e0} (B_0 R_m)$,其中 k 为玻尔兹曼 常数, α 为实验拟合常数, Τ_ω为阴极区域的电子温 度 阴极区域磁场近似为 $B_0 = 0.1T$.

放电空间中的等离子体密度与放电电流密度的 变化有关 ,根据文献 24] ,阴极区域等离子体密度与 放电电流密度之间存在近似的指数函数关系 ,本文 中根据实验数据拟合结果 ,放电空间中的等离子体 密度与放电电流密度之间存在线性关系 ,用参数 ε 表达空间的放电电流密度与放电电流密度的线形关 系 , $\xi = R + SJ_a$,其中 R ,S 为常数 .最后得到离子束 流密度为^[25]

 $\Gamma_{e} = \xi n u = \xi (\Gamma_{D} + \Gamma_{E} + \Gamma_{B}),$ (1) 其中扩散通量 $\Gamma_{D} = - D \nabla n$ 离子扩散系数 $D = kT_{i}/m_{i}\gamma_{in}$ 离子和中性粒子之间的碰撞频率和电子和中性粒子的碰撞频率取自文献 25].考虑到双极扩散效应 扩散通量的表达式近似为

$$\Gamma_{\rm D} = D \left(1 + \frac{T_{\rm e}}{T_{\rm i}} \right) \frac{n\chi}{z - d_0} , \qquad (2)$$

其中 $\chi = \omega_e / \gamma_{en}, \omega_e$ 为非平衡磁场中相对的电子回 旋频率, γ_{en} 为非平衡磁场中的电子和中性原子之间 的碰撞频率.沿 *z* 轴存在电场 *E* 和等离子体密度梯 度,离子的轴向电场通量为 $\Gamma_E = n\mu_i E$, $\mu_i = e/m_i \gamma_{in}$.由于同轴磁场作用形成的等效离子束流分量 $\Gamma_{\rm B} = n\mu_i E_{\parallel}$.根据玻姆条件 ,等离子体饱和离子束流 密度为

$$J_{\rm c} = \frac{0.6eu_{\rm b}\Gamma_{\rm c}}{u_{\rm c}} , \qquad (3)$$

其中 *J*。的单位为 mA/cm², *u*b 为玻姆速度, *u*b 为离子的热速度.综合上述分析,对一个非平衡磁控溅射沉积系统,得到放电伏安特性数据,就可以得到在各种不同的放电参数条件下的轴向离子饱和通量及其空间分布.

4. 结果与分析

实验中通过调整离子收集电极和阴极的距离, 在不同的放电电流密度、非平衡磁场电流条件下测 定轴向离子饱和电流密度,磁控溅射的放电电流在 0.5-4.5A之间变化时,换算成电流密度,其变化范 围为 $J_d = 0.033-0.15A/cm^2$.根据 Paschen 定律,在 不同放电气压条件下,启辉电压存在极小值.在 Paschen 曲线拐点的两侧,根据伏安特性可以得到两 种相应的 β_P 关系^[11].根据实验数据分析,放电气 压近似为 p > 2Pa和 p < 2Pa条件下采用 β_1 和 β_2 两 种形式^[8].维持放电的最低电压和电流密度分别为 $V_0 = 250V$, $J_0 = 0.01A/cm^2$.在参数 ξ 的表达式中,常 数为 $R = 2 \times 10^{-5}$,S的取值分别对应于 $B_{s0} < 6 \times 10^{-3}$ T和 $B_{s0} > 6 \times 10^{-3}$ T两种情况,因为同轴磁场影 响阴极区域的电荷密度,在 $I_{coil} = 0A$ 时,S = 0.07; $I_{coil} > 0A$ 时, $S \approx 0.2$.

图 2 至图 4 中符号是在 0.2Pa 放电气压条件 下,分别在距离阴极 60,110 和 230mm 位置上,在不 同的线圈电流条件下,由实验测得的饱和离子束流 *J*。与放电电流密度 *J*。的变化关系.可见增加轴向 约束磁场的电流强度,收集电流密度也随之显著 增加.

轴向约束磁场越强,收集到的饱和离子电流密 度随放电电流增加的速度越快.如图4所示,放电电 流密度为0.15A/cm²,轴向约束磁场线圈电流为0和 4A时,探针的收集电流密度分别为3和9.5mA/cm², 增加三倍左右.由图2和图3可知,当放电电流大于 0.08A/cm²,轴向约束磁场电流大于2.5A时,在收集 电流密度曲线上出现平台,表明收集电流密度已经 达到饱和离子收集电流密度的最大值.在距离阴极 60和110mm位置上,在同轴磁场约束和放电电流密 度超过0.08A/cm²时,收集电极的饱和电流密度都 向饱和状态转化.在对应于 230mm 位置上,最大的 饱和离子密度通量也达到 9mA/cm² 以上.

带电粒子在空间缓变的磁场中运动,在磁场峰 值位置 z₀的两侧,磁场梯度符号不同,磁镜效应的 影响表现在伏安特性和离子饱和束流两方面⁷¹.采 用本文磁流体模型准确计算实验参数的变化趋势.

图 2 至图 4 中计算结果符合实验数据的变化趋势.当 *I*_{coil} = 4A 时,在 60 和 110mm 位置上,计算结果和实验数据都达到离子收集电流密度的最大值状态.饱和离子束流随放电电流密度增加很快,达到平台状态.其他的约束磁场电流条件下,饱和离子束流随放电电流密度增加也会向平台状态变化.当继续增大放电电流,离子收集电流密度有减小的趋势,与实验现象较符合.研究表明^[8],附加线圈约束后,系统由空间电荷限制的放电状态向电荷迁移率控制的放电状态过渡,由于电子与中性粒子的碰撞概率增加,高能电子密度减小,系统的电离率得到提高,这时离子收集电流密度增加,但过高的约束磁场又会使离子的迁移率降低,造成离子收集电流密度减小,这样两种趋势使离子收集电流密度出现饱和值.



图 2 在 0.2Pa 左右放电气压条件下,距离阴极 60mm,离子束流 密度 *J*_e 与放电电流密度 *J*_d 及磁场线圈电流的变化关系

为了给出这种系统的等离子体空间分布状态, 采用模型计算了系统的离子/原子到达比、离化率分 布和放电气压对于离子收集电流密度的影响关系. 图 5 为 230mm 位置上,不同约束磁场条件下,离子、 原子的到达比 R(F_{ion}/F_{aton})与阴极电流密度的关 系.磁场约束提高到达比,但随放电电流密度的提 高,由于阴极溅射效应随放电功率增加得更快,更多 的中性原子到达沉积区域,造成到达比相对减小. 图 6 为放电空间等离子体的离化率空间分布,由于



图 3 在 110mm 位置 ,离子束流密度 J_e 与放电电流密度 J_d 及磁 场线圈电流的变化关系 图注同图 2



图 4 在 230mm 位置 ,离子束流密度 J_c 与放电电流密度 J_d 及磁 场线圈电流的变化关系 图注同图 2

约束磁场的影响,离化率的空间分布表现出两种状态.约束磁场电流为1—4A时,110mm沉积位置离 化率达到1%左右,比*I*_{coll}=0A的情况提高三倍 左右.

图 7 为不同放电电流密度条件下,*I*_{col} = 0A 和 *I*_{col} = 4A 时,饱和离子收集束流密度和放电气压之 间的变化关系.约束磁场增加各种放电气压条件下 的饱和离子束流密度.在较高的放电气压条件下,粒 子的自由程减小,需要考虑电子和中性离子、离子和 中性粒子之间的碰撞电离和复合效应给计算结果所 带来的影响,这里需要更复杂的分析,本文中只给出 参考结果.

磁控溅射沉积系统中存在固有的不稳定性^[9], 如声不稳定性和中性拖曳不稳定性等,尤其在较低 的放电气压条件下,给实验数值带来一定起伏,但与 模型计算数值比较,两者仍然非常符合.低温等离子 体中气体电离率相对较小,在 0.2—0.8Pa 气压条件 下 粒子的自由程接近放电空间的特征尺寸,流体模 型能够准确预测放电的物理过程.本文工作主要讨 论磁镜效应对于离子的迁移状态的影响²⁶¹,还有一 些其他的影响因素,例如对于区分由放电气体原子 和溅射靶材产生的离子,电子温度、空间电位等放电 参数的分布状态;由于磁场的影响,电子能量分布偏 离理想的麦克斯韦分布等等,虽然会在一定程度上 影响实验结果,但不会影响总的趋势,这些问题都需 要深入地进行实验和数值研究.



图 5 在 230mm 位置 ,离子、原子的到达比 R(F_{ion}/F_{aton})与放电 电流密度 J_a 及磁场线圈电流的变化关系 图注同图 2



图 6 在 0.2Pa 不同磁场线圈电流条件下 ,离化率与轴向位置的 关系 放电电流密度为 $J_d = 0.12A/cm^2$.图注同图 2



图 7 不同约束磁场电流条件和放电电流密度条件下,对应 110mm 位置的离子束流密度与气压的变化关系

磁控溅射适合沉积各种非磁性金属薄膜,例如 Ti,Cu,Mo,Zr等,这些材料不会影响阴极磁场,这种 情况下可以采用本文模型计算离子束流密度和离子 轰击效应,得到离子饱和束流密度的数值,根据 Child 定律可以求出各种偏压条件下基片上的离子 束流密度,由此了解和控制沉积材料的结构和性 能^{16—19]};溅射气体如果采用反应气体,气体的反应 特性对气压和饱和离子束流会产生影响,在这种情 况下需要更深入的研究工作.

5.结 论

根据流体力学公式,推导了磁控溅射沉积系统 轴向饱和离子束流密度与放电气压、放电电流密度、 空间位置之间的关系,与实验数据较符合。

 非平衡磁控溅射沉积系统中,磁镜效应显著 影响系统的离子束流分布、提高等离子体离化率和 到达比。

 2. 在非平衡磁场的影响下,饱和离子束流密度 有最大值,达到最大值后,饱和离子束流密度不再随 放电电流和约束磁场激励电流的增加而增加。

本文分析结论可以用于分析磁控溅射沉积系统 中参数对于沉积薄膜的结构、性能的影响。

- [1] Window B and Savvides N 1986 J. Vac. Sci. Technol. A 4 196
- [2] Window B and Savvides N 1986 J. Vac. Sci. Technol. A 4 453
- [3] Window B and Harding G L 1990 J. Vac. Sci. Technol. A 8 1277
- [4] Xu J et al 2001 Thin Solid Films 390 107
- [5] Musil J and Vlček J 1998 Mater. Chem. Phys. 54 116
- [6] Wu D W et al 1999 Acta Phys. Sin. 48 904(in Chinese] 吴大维 等 1999 物理学报 48 904]
- [7] Mu Z X, Li G Q and Liu C 2003 Vacuum Sci. Technol. 4 243(in Chinese] 牟宗信、李国卿、柳 翠 2003 真空科学与技术 4 243]
- [8] Mu Z X, Li G Q and Che D L 2004 Acta Phys. Sin. 53 1994(in Chinese] 牟宗信、李国卿、车德良 2004 物理学报 53 1994]
- [9] Thornton J A 1978 J. Vac. Sci. Technol. 15 171
- [10] Myers A M, Doyle J R and Abelson J R 1991 J. Vac. Sci. Technol. A 9 614
- [11] Westwood W D and Maniv S 1983 J. Appl. Phys. 54 6841
- [12] Rossnagel S M 1987 J. Vac. Sci. Technol. A 5 88
- [13] Bradley J W, Arnell R D and Armour D G 1997 Surf. Coatings Technol. 97 538
- [14] Hondo S and Nanbu K 2001 J. Vac. Sci. Technol. A 19 830
- [15] Svadkovski I V, Golosov D A and Zavatskiy S M 2003 Vacuum 68 283
- [16] Gall D , Shin C S and Spila T 2002 J. Appl. Phys. 91 3589

- [17] Zhang J M and Xu K W 2003 Acta Phys. Sin. 52 1207 (in Chinese) [张建民、徐可为 2003 物理学报 52 1207]
- [18] Zhang J M and Xu K W 2003 Acta Phys. Sin. 52 145(in Chinese) [张建民、徐可为 2003 物理学报 52 145]
- [19] Petrov I, Barna P B and Hultman L 2003 J. Vac. Sci. Technol. A 21 S117
- [20] Sheridan T E, Goecker M J and Goree J 1990 J. Vac. Sci. Technol. A 8 30
- [21] MaTC, HuXW and ChenYH 1988 The Principle of Plasma Physics (Hefei: Press of University of Science and Technology of China)p247 (in Chinese] 马腾才、胡希伟、陈银华 1988 等离 子体物理(合肥:中国科学技术大学出版社)第 247页]
- [22] Labun A H , Capjack C E and Seguin H J 1990 J. Appl. Phys. 68 3935
- [23] Bradley J W and Lister G 1997 Plasma Sour. Sci. Technol. 6 524
- [24] Sheridan T E, Goecker M J and Goree J 1990 J. Vac. Sci. Technol. A 8 1623
- [25] Sugai H 2002 The Plasma Engineering(Beijing: Science Press) p159(in Chinese)[菅井秀郎 2002 等离子体电子工程(北京: 科学出版社)第 159页]
- [26] Liu M H et al. 2000 Acta Phys. Sin. 49 497 in Chinese] 刘明海 等 2000 物理学报 49 497]

The model of the magnetic mirror effect in the unbalanced magnetron sputtering ion beams *

Mu Zong-Xin Li Guo-Qing Qin Fu-Wen Huang Kai-Yu Che De-Liang

 (State Key Laboratory for Materials Modification by Laser , Ion and Electron Beams , Dalian University of Technology , Dalian 116024 , China)
(Received 28 June 2004 ; revised manuscript received 4 August 2004)

Abstract

A conventional magnetron and a co-axial electro-solenoid were used to construct an unbalanced magnetron sputtering deposition system for investigating its properties. At 0.2Pa, argon gas discharging, a shielded planar ion-collecting electrode was taken to measure the saturation ion beam flux density at the different axial positions. The saturation ion flux reached about $9mA/cm^2$. The magneto-hydrodynamics was applied to analyse the influences of the magnetic mirror effect on the discharge properties caused by the solenoid. As a result, the comparisons of the theoretical calculations with the experiments indicated that the model described correctly the plasma properties in the unbalanced magnetron sputtering system.

Keywords : plasma, metallic thin film/non-magnetism, magnetron sputtering, magnetic mirror PACC : 7360, 5225, 5270, 5275

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China Grant No. 50407015).