磁控溅射辉光放电特性的模拟研究*

沈向前 谢泉† 肖清泉 陈茜 丰云

(贵州大学理学院, 新型光电子材料与技术研究所, 贵阳 550025)

(2011 年 6 月 23 日收到; 2012 年 2 月 4 日收到修改稿)

采用二维、自洽的 PIC/MCC (particle-in-cell with Monte Carlo collision) 方法, 模拟了磁控溅射辉光放电过程, 重点讨论了工作参数对放电模式和放电电流的影响. 模拟结果表明, 当工作气压由小到大或空间磁场从强到弱变化时, 放电模式会从阴极空间电荷主导的放电模式过渡到阳极空间电荷主导的放电模式. 在过渡状态, 对应的工作气压与磁通密度分别为 0.67 Pa 和 0.05 T; 随着工作气压的增大, 放电电流先增大后趋向平衡, 当工作气压超过 2.5 Pa 时, 电流开始随工作气压的增大而减小; 而阴极电压增大时, 放电电流近似线性增加.

关键词: 磁控溅射, 辉光放电, 计算机模拟, 状态分布

PACS: 51.50.+v, 52.20.Hv, 52.65.−y

1 引 言

随着微电子产业的迅猛发展, 磁控溅射沉积技术被广泛应用于各种薄膜材料和薄膜器件的制备中 [1]. 由于磁场的束缚作用, 磁控溅射放电可以在较低的气压和电压下进行. 相比真空蒸镀法等传统的制膜方法, 磁控溅射法具有高速、低温两大显著特点, 且膜基结合好, 致密度高, 能在不同的衬底上沉积任意金属或非金属的薄膜 [2,3]. 有关磁控溅射机理研究的焦点主要集中在如何提高靶面电流分布密度的均匀性, 从而提高靶材利用率; 如何增加工作气体的空间离化率及溅射原子的输运率, 从而提高溅射效率; 如何在大尺度上获得均匀、致密的薄膜, 从而使溅射技术产业化. 这些问题的解决, 都有待于对磁控溅射放电特性进行深入的研究. 磁控溅射放电属于反常辉光放电范畴, 数值模拟是研究放电过程的有效手段. 数值模拟一方面可以对单个粒子的运动和碰撞进行跟踪, 研究粒子的个体行为; 另一方面又可以对大量粒子的运动进行统计, 研究大量粒子的集体行为. 在放电粒子的微观行为和宏观表现之间, 数值模拟起到了联系微观和宏观的桥梁作用, 并逐渐发展成研究磁控溅射起辉过程的一种重要方法.

粒子模拟 (PIC) 与 Monte Carlo 相结合的 PIC/MCC (particle-in-cell with Monte Carlo collision)[4,5] 方法由 Birdsall 等 [6] 和 Boswell 等 [7] 发展和完善. 从原理上看, PIC 方法基于第一原理, 不做任何假设和近似, 直接跟踪每个粒子在外加场和它们自身激发场中的运动, 通过对大量运动粒子统计平均得到放电特性的宏观参数. PIC/MCC 方法中, 粒子运动由经典的 Newton-Lorentz 运动方程描述, 粒子激发的场由经典 Maxwell 方程组求解, 粒子之间碰撞由 Monte Carlo 方法描述. 随着计算机计算速度和存储能力的提高, PIC/MCC 方法对低气压、弱电离等离子体过程模拟已发展成熟. 许多学者用 PIC/MCC 方法研究了磁控溅射的起辉过程. 文献 [2, 8, 9] 对磁控溅射放电平衡后的空间电势分布、电场分布、带电粒子密度分布及靶面粒子流分布进行了详细的讨论. 有关磁控溅射在不同工作参数条件下放电模式转变的研究较少. 文献 [10] 对磁控溅射的实验观测表明, 当磁场强度较小时, 磁

* 国家自然科学基金 (批准号: 60766002)、科技部国际合作专项基金 (批准号: 2008DFA52210)、贵州省科技攻关项目 (批准号: 黔科合 GY 字 [2011] 3015)、贵州省科技创新人才团队建设专项基金 (批准号: 黔科合人才团队 [2011] 4002) 和贵州省国际科技合作项目 (批准号: 黔科合外 G 字 [2012] 7004, 黔科合外 G 字 [2009] 700113) 资助的课题.

† E-mail: qxie@gzu.edu.com

© 2012 中国物理学会 Chinese Physical Society

控溅射放电是效率较高的阳极空间电荷主导的放电 (PSC) 模式; 反之, 放电处在效率较低的阴极空间电荷主导的放电 (NSC) 模式. 文献 [11] 采用一维 PIC 方法对轴对称直流磁控溅射放电过程进行了模拟, 发现当磁场强度保持不变时, 随着工作气压的增大, 放电从 NSC 模式逐渐过渡到 PSC 模式. 本文基于 PIC/MCC 方法, 采用二维空间坐标, 三维速度坐标 (2d3v) 的静电模型, 对平面直流磁控溅射的辉光放电过程进行了模拟, 着重讨论了不同工作参数对磁控溅射放电模式和靶面电流的影响.

2 模拟模型

2.1 模拟流程

在 PIC/MCC 计算中, 每个超粒子代表 10^6—10^9 个真实的粒子. 具体的计算步骤为 [12,13,14]: 1) 通过对初始粒子的位置分布和速度分布插值, 求得空间网格点的电荷密度 ρ 和电流密度 j; 2) 根据网格点的 ρ 和 j, 解 Maxwell 方程组, 求得空间网格点的电场 $\boldsymbol{E}$ 和磁通密度 $\boldsymbol{B}$; 3) 根据空间网格点的 $\boldsymbol{E}$ 和 $\boldsymbol{B}$, 求得各粒子所在位置的电场和磁通密度, 确定各粒子所受到的力; 4) 解 Newton-Lorentz 方程, 推动粒子, 得到粒子新的位置分布和速度分布; 5) 边界检查, 对碰到边界的粒子应用相应的边界条件; 6) 碰撞检查, 对发生碰撞的粒子应用 MCC 方法, 调整粒子的速度. 此外, 为了提高计算速度, 可以采用异步时标法、不同权重粒子、空碰撞、并行算法等方法 [12].

2.2 模拟参数

模拟中做如下假设: x 轴通过靶材中心且平行于靶面; y 轴垂直于靶面; 靶材直径取为 60 mm, 靶材和衬底之间的距离为 60 mm. 二次电子发射系数取为 $\gamma = 0.1$, 空间步长 $\Delta x = \Delta y = 0.1$ mm, 时间步长 $\Delta t = 10^{-10}$ s. 由于电子运动速度比离子速度快得多, 故电子每移动 10 次时推动离子 1 次, 即取 $\Delta t_{\mathrm{e}} = 10\Delta t_{\mathrm{i}} = \Delta t$. 初始电子温度取为 5 eV, 氩离子温度取为 0.026 eV. 初始电子密度和氩离子密度都为 10^{15} m^{-3}, 均匀分布在放电空间中, 它们的初始速度服从 Maxwell 分布. 模拟中考虑如下粒子间的碰撞:

$$\mathrm{e} + \mathrm{Ar} \rightarrow \mathrm{Ar} + \mathrm{e}, \tag{1}$$

$$\mathrm{e} + \mathrm{Ar} \rightarrow \mathrm{Ar}^{+} + \mathrm{e} + \mathrm{e}, \tag{2}$$

$$\mathrm{Ar}^{+} + \mathrm{Ar} \rightarrow \mathrm{Ar} + \mathrm{Ar}^{+}. \tag{3}$$

在研究放电模式的转变时, 为了方便起见, 选用均匀的磁场分布. 讨论工作参数对放电电流的影响时, 考虑放电空间中真实的磁场分布, 永磁体在放电空间中的磁场分布由有限元分析软件 ANSYS 模拟得到.

3 模拟结果与讨论

3.1 工作参数对放电模式的影响

保持磁通密度 $B = 0.03$ T 不变, 工作气压 $p = 0.1$—5 Pa 范围内变化, 研究了不同工作气压对放电模式的影响. 模拟结果表明: 当气压较低时, 放电电压大部分降落在靠近衬底的阳极, 形成明显的阳极位降区, 此时的放电模式为 NSC 模式. 随着工作气压的逐渐增大, 阳极位降区的电势差开始减小. 与此同时, 靠近靶材阴极端的电势落差开始增大, 形成阴极位降区. 当工作气压 $p = 0.67$ Pa 左右时, 阳极位降区和阴极位降区的电势差近似相等, 在放电空间中能同时观察到明显的阳极位降区和阴极位降区. 此后, 随着工作气压的继续增大, 阳极位降区逐渐消失, 到 $p = 4$ Pa 左右时, 只能观察到明显的阴极位降区, 此时, 放电机理过渡到 PSC 模式. 图 1 给出了工作气压 $p = 0.13$, 0.67 和 4.0 Pa 时放电空间中的电势分布, 分别代表了 NSC 模式、过渡模式和 PSC 模式.

保持工作气压 $p = 0.67$ Pa 不变, 磁通密度 B 在 0.01—0.1 T 范围内变化, 研究了不同磁场强度对放电模式的影响, 结果如图 2 所示. 当 B 较小时, 放电处于 PSC 模式; 当 B 增加到 0.05 T 时, 能同时观察到明显的阳极位降和阴极位降, 放电处于过渡模式; 当 B 增加到 0.1 T 时, 阴极位降消失, 放电电压大部分降落在阳极位降区, 放电模式转为 NSC 模式.

工作气压和磁场强度对放电模式的影响可以用带电粒子在正交电磁场中的迁移率来定性解释. 用 μ' 表示带电粒子在有磁场存在时垂直磁场方向的迁移率, μ 表示带电粒子在无磁场时的迁移率. 则 μ' 和 μ 存在如下关系:

$$\mu' = \frac{\mu}{1 + (\omega/\nu)^2}$$

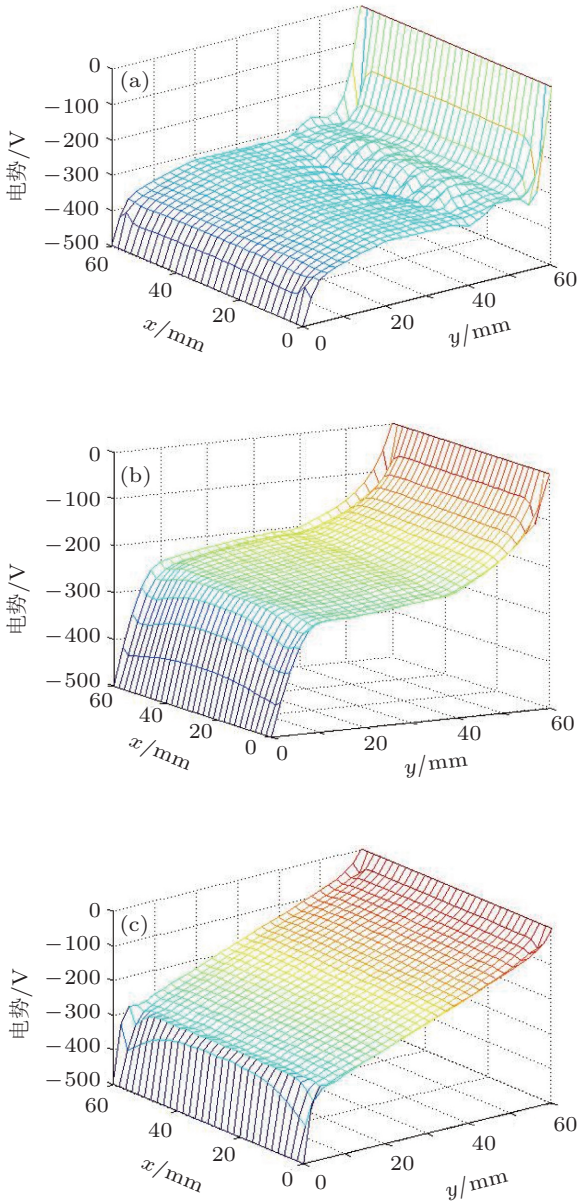

图 1 不同工作气压条件下的电势分布, $B = 0.03$ T
(a) $p = 0.13$ Pa; (b) $p = 0.67$ Pa; (c) $p = 4.0$ Pa

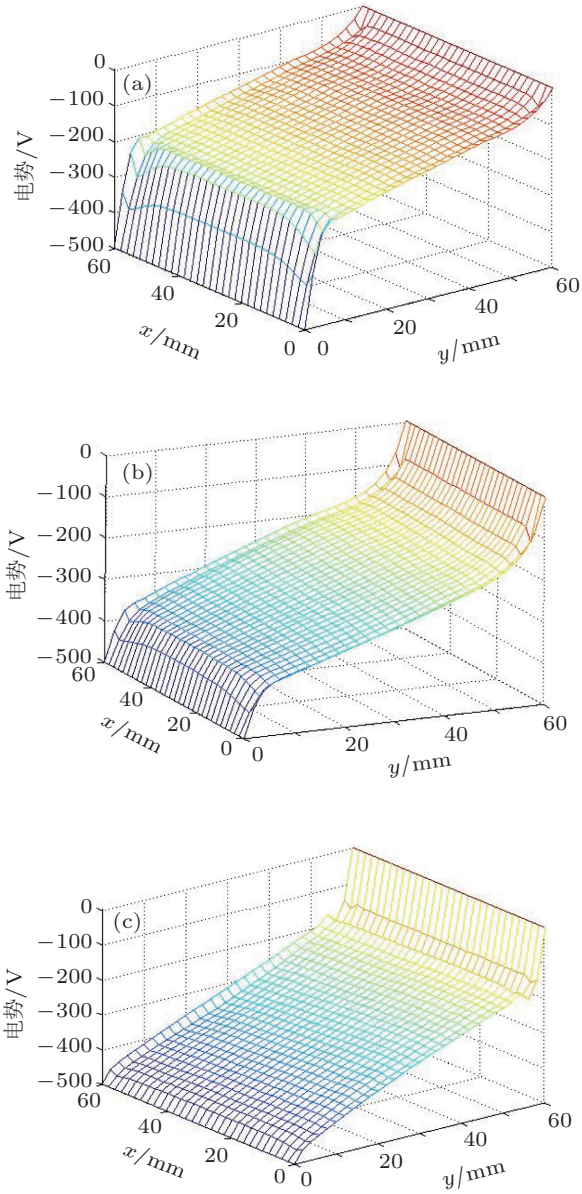

图 2 不同磁通密度条件下的电势分布图, $p = 0.67$ Pa
(a) $B = 0.02$ T; (b) $B = 0.05$ T; (c) $B = 0.1$ T

其中 ω 为带电粒子的回旋频率, ν 为带电粒子与中性气体的碰撞频率. 无磁场存在时, 电子和离子的迁移率分别为 $\mu_{\rm e} = q/m_{\rm e}\nu_{\rm en}$, $\mu_{\rm i} = q/m_{\rm i}\nu_{\rm in}$, 式中 q 为单位电荷电量, $m_{\rm e}$, $m_{\rm i}$ 分别为电子和氩离子质量, $\nu_{\rm en}$, $\nu_{\rm in}$ 分别为电子和氩离子与中性气体的碰撞频率. 由于 $m_{\rm i} \gg m_{\rm e}$, 故有 $\mu_{\rm e} \gg \mu_{\rm i}$, 即无磁场时, 电子在电场中的漂移速度会远远大于离子的漂移速度. 当放电达到平衡时, 电流守恒要求离子速度和电子速度相等, 这就需要在靶材附近有一个大的电势差来加速离子的运动, 而在衬底附近, 由于电子速度已足够快, 不需要大的电势差加速, 因此, 大部分放电电压降落到了靶材附近, 形成阴极位降区, 放电模式为 PSC 模式. 在磁场中, 由于磁场的束缚作用, 当磁场较大或气压较低时会有 $\omega_{\rm e} \gg \nu_{\rm en}$, 电子在磁场中的迁移率 $\mu'_{\rm e}$ 相比无磁场时的 $\mu_{\rm e}$ 会有极大减小. 离子由于质量很大, 磁场对离子的影响很小, 故离子在磁场中的迁移率 $\mu'_{\rm i}$ 和无磁场时的 $\mu_{\rm i}$ 相比基本保持不变. 这样, 随着磁场的增大或工作气压的减小, 电子迁移率会减小而离子迁移率近似维持不变. 当 $\mu'_{\rm e} < \mu'_{\rm i}$ 时, 电子向衬底的输运速度小于离子向靶材的输运速度. 此时, 为了保证放电平衡时电子速度和离子速度相等, 就需要在衬底附近有一个大的电势差来加速电子的运动, 阳极位降区形成, 放电模式过渡到 NSC 模式.

3.2 工作参数对放电电流的影响

3.2.1 靶面离子流分布

研究了真实磁场分布条件下工作气压和阴极电压对磁控溅射放电电流的影响. 永磁体产生的磁场在放电空间的分布由有限元分析软件 ANSYS 模拟得到. 模拟的磁控溅射装置为中国科学院沈阳科学仪器研制中心研制的 JGP560C VIII 型带空气锁的超高真空多靶磁控溅射镀膜系统. 图 3 和图 4 分别给出了不同阴极电压和工作气压对靶面离子流分布的影响. 可以看出, 随着阴极电压的增大, 靶面离子流近似线性增大, 而当工作气压增大时, 离子流先增大后减小. 文献[2] 中对直流磁控溅射的数值模拟也得到与本文类似的分布. 当电压增大时, 电子可以在放电空间中得到更多的能量, 与工作气体发生更多的离化碰撞, 产生更多的离子. 此外, 当电压增大时, 离子到达靶面的速度也会随之增大, 故电压增大时, 靶面离子流也增大. 当工作气压较低时, 电子的回旋频率远大于电子与工作气体的碰撞频率, 即有 $\omega_e \gg \nu_{en}$. 这种情况下, 磁场对电子束缚作用很强, 电子的运动主要由电场和磁场决定. 当工作气压增大时, 电子与工作气体碰撞的概率也随之变大, 更多的碰撞产生了更多的离子. 由此可知, 当工作气压较低时, 随着工作气压增大, 靶面离子流增大. 继续增大工作气压, 电子与中性气体的碰撞频率 ν_{en} 会迅速增大, 而在一定的磁场结构下, ω_e 不变. 当工作气压增大到一定值时, ν_{en} 逐渐接近 ω_e, 电磁场对电子的束缚作用逐渐减弱, 取而代之的是电子与中性气体大量无规则的碰撞. 由于失去磁场的束缚作用, 电子在放电空间中的寿命变短, 与中性气体碰撞的次数也会随之减少. 因此当工作气压超过一定的值时, 随着工作气压的增大, 靶面离子流反而减小. 进一步的模拟也证实了这一点. 图 5 给出了工作气压 $p = 1$ 和 4 Pa 时放电空间中的电子密度分布. 从图 5 可以看出, $p = 1$ Pa 时, 磁场对电子的束缚作用很强, 磁场越强的点对应的电子密度也越大, 在磁场最强的两个点形成两个显著的分布峰; 当 $p = 4$ Pa 时, 放电空间中电子分布趋向均匀, 说明磁场对电子束缚作用减弱.

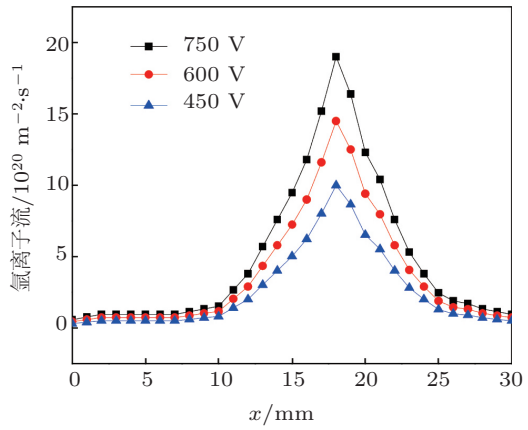

图 3 阴极电压对靶面离子流分布的影响

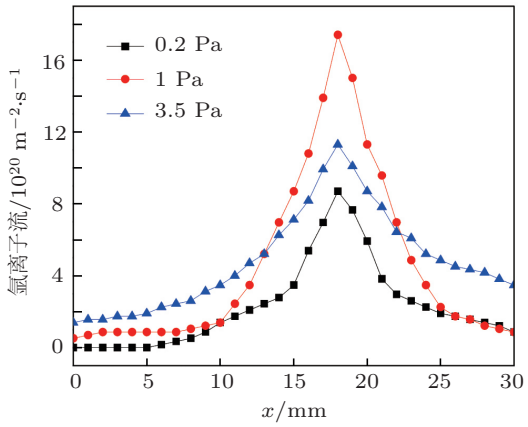

图 4 工作气压对靶面离子流分布的影响

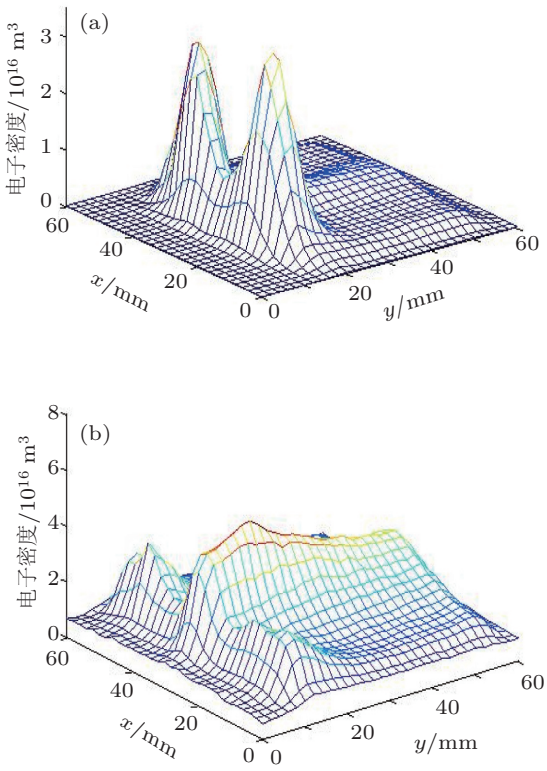

图 5 不同工作气压条件下的电子密度分布 (a) $p = 1$ Pa; (b) $p = 4$ Pa

3.2.2 靶面电流的计算

靶面电流密度 $j(r) = qn_i v_i$, 式中, q 为单位电荷电量, n_i 和 v_i 为到达靶面的离子密度及其对应的速度. 电流密度在靶面呈轴对称分布, 靶面总电流

$$I = \int_0^R 2\pi r j(r) \mathrm{d}r,$$

式中 R 为靶材半径. 模拟计算了靶面电流与工作气压和阴极电压的关系, 并与实验测量数据进行了比较, 所得结果如图 6 和图 7 所示.

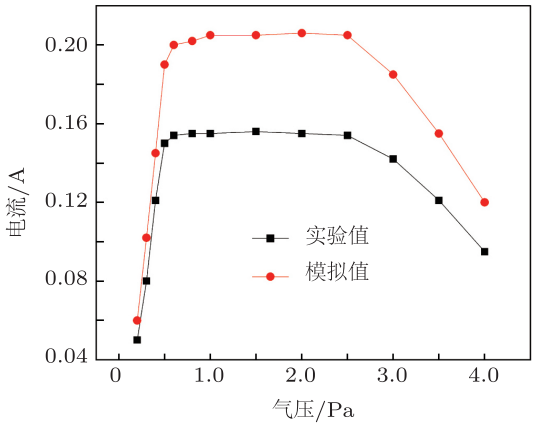

图 6 放电电流与工作气压的关系

由此可以看出, $p < 0.5$ Pa 时, 放电电流随工作气压的升高而迅速增大, 随后放电电流趋于平衡, 当工 $p > 2.5$ Pa 时, 放电电流开始随工作气压的升高而减小. 当阴极电压增大时, 放电电流近似线性增大.

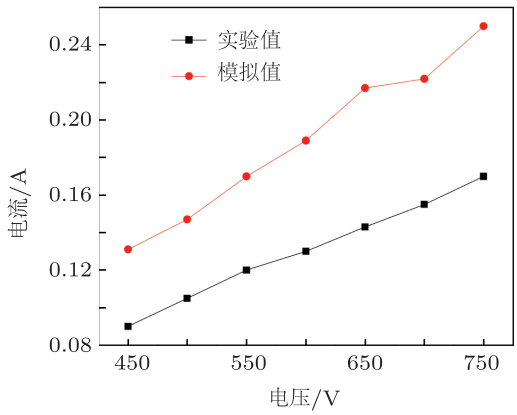

图 7 放电电流与阴极电压的关系

4 结 论

对磁控溅射辉光放电过程的模拟表明, 当放电空间中磁场太强或工作气压太低时, 放电模式容易处于效率较低的 NSC 模式, 另外太强的磁场使电子回旋半径过小, 不利于电子从电场得到能量; 工作气压过小, 电子与气体碰撞概率减小, 不利于放电的维持. 因此在磁控溅射结构设计和工作参数的选取时, 磁场不能太强, 工作气压不能太低. 根据模拟得到的放电电流与工作气压的关系可知, 过高的工作气压也会导致电流下降, 降低溅射效率. 对于平面直流磁控溅射而言, 较为理想的磁通密度为 0.03 T 左右, 工作气压为 1.0 Pa 左右.

[1] Shon C H, Lee J K 2002 *Appl. Surf. Sci.* **192** 258

[2] Kolev I, Bogaerts A 2009 *J. Vac. Sci. Technol.* A **27** 20

[3] Li Y P, Liu Z T, Zhao H L, Liu W T, Yan F 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2937 (in Chinese) [李阳平, 刘正堂, 赵海龙, 刘文婷, 闫峰 2007 物理学报 **56** 2937]

[4] Verboncoeur J P 2005 *Plasma Phys. Contr. Fusion* **47** A231

[5] Jin X L, Yang Z H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5930 (in Chinese) [金晓林, 杨中海 2006 物理学报 **55** 5930]

[6] Birdsall C K, Langdon A B 1985 *Plasma Physics via Computer Simulation* (New York: McGraw-Hill) p7

[7] Boswell R W, Morey I J 1988 *Appl. Phys. Lett.* **52** 21

[8] Shon C H, Lee J K 1998 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **26** 1635

[9] Zhao H Y, Mu Z X 2008 *Chin. Phys.* B **17** 1475

[10] Wasa K, Kitabatake M 2003 *Thin Film Materials Technology* (Berlin: Springer Publishing) p130

[11] Straaten T A, Cramer N F 1998 *Appl. Phys.* **31** 177

[12] Kawamura E, Birdsall C K, Vahedi V 2000 *Plasma Sources Sci. Technol.* **9** 413

[13] Yang C, Liu D G, Wang X M, Liu L Q, Wang X Q, Liu S G 2012 *Acta Phys. Sin.* (in Chinese) **61** 145204 [杨超, 刘大刚, 王小敏, 刘腊群, 王学琼, 刘盛纲 2012 物理学报 **61** 145204]

[14] Yuan Z C, Shi J M, Huang Y, Ma L 2008 *Nuclear Fusion and Plasma Physics* **28** 281 (in Chinese) [袁忠才, 时家明, 黄勇, 马柳 2008 核聚变与等离子体物理 **28** 281]

Computer simulation of the glow discharge characteristics in magnetron sputtering*

Shen Xiang-Qian Xie Quan† Xiao Qing-Quan Chen Qian Feng Yun

(*Institute of Advanced Optoelectronic Materials and Technology, College of Science, Guizhou University, Guiyang* 550025, *China*)

(Received 23 June 2011; revised manuscript received 4 February 2012)

Abstract

In this paper, the process of glow discharge in magnetron sputtering is studied by the particle-in-cell with Monte Carlo collision method. The proposed model is a two-dimensional and self-consistent approach. The results show that the discharge mode transits from the negative space-charge-dominated mode to positive space-charge-dominated mode with working pressure increasing or magnetic field weakening. At the transition state, working pressure and magnetic field are 0.67 Pa and 0.05 T, respectively. Discharge current increases as the cathode voltage increases. When pressure increases, discharge current first increases and then tends to balance. When the pressure is higher than 2.5 Pa, current begins to decreases with the increase of the pressure.

Keywords: magnetron sputtering, glow discharge, computer simulation, state distribution

PACS: 51.50.+v, 52.20.Hv, 52.65.−y

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60766002), the Special Foundation for International Cooperation of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2008DFA52210), the Science and Technology Research Project of Guizhou Province, China (Grant No. [2011] 3015), the Special Fund for Construction of Sci-Tech Innovative Talents Team of Guizhou Province, China (Grant No. [2011] 4002), and the Fund for International Sci-Tech Cooperation of Guizhou Province, China (Grant Nos. [2012] 7004, [2009] 700113).

† E-mail: qxie@gzu.edu.com