

# 双极高功率脉冲磁控溅射阳极电双层的基本特征 及其对离子能量的影响\*

吴亦言<sup>1)</sup> 韩明月<sup>1†)</sup> 罗阳<sup>1)</sup> 杨明轩<sup>2)</sup> 李刘合<sup>1†)</sup>

1) (北京航空航天大学, 机械工程及自动化学院, 先进表面涂层技术实验室,  
北京 100190)

2) (北京航空航天大学, 机械工程及自动化学院, 特种高效焊接/增材工艺装备  
实验室, 北京 100190)

## 摘要

双极高功率脉冲磁控溅射 (Bipolar pulsed HiPIMS, BP-HiPIMS) 正脉冲期间形成的阳极电双层 (Double layer, DL) 是离子加速的重要结构。目前, 电双层的形成特征及其对离子能量的调控机制尚不清晰。针对此, 本文采用自主研发的高时空分辨发射探针, 结合质谱仪, 系统诊断了铜靶 BP-HiPIMS 放电中等离子体电位 ( $V_p$ ) 的时空演变及离子能量分布特征, 分析了放电参数对电双层电位特征及离子能量的影响。结果表明, 正脉冲开启后, 靶前区域经历了鞘层结构重建到动态维持的过程。结合电位测量结果和放电过程图像, 电双层边界稳定在磁零点附近, 形成约 20 V 的电位梯度。放电参数会影响电双层形成过程:更高的正脉冲电压有利于电双层的形成并增加其边界电位降, 进而提高高能离子占比; 延长负脉冲宽度虽然可以增加电离能较低的金属靶原子占比, 缩短电双层建立的时间, 但同时会导致大量离子在负脉冲期间到达基体位置, 压缩离子在正脉冲下的有效加速时间, 减少高能离子占比。这些结果揭示了电双层演变与粒子增能的物理机制, 为调控高能离子通量、沉积先进薄膜提供了实验和理论基础。

**关键词:** 双极高功率脉冲磁控溅射, 等离子体电位, 电双层, 离子能量

**PACS:** 52.70.-m, 52.40.Kh, 52.80.-s, 81.15.Cd

**基金:** 中国航空发动机集团产学研合作项目(批准号: HFZL2023CXY014)、国家自然科学基金(批准号: NSFC 12275014, NSFC 12305278)、北京市自然科学基金(批准号: L252098、L252037)、电能高密度转换全国重点实验室开放基金(批准号: DN202514)资助的课题。

† 通信作者. E-mail: hanmingyue@buaa.edu.cn, liliuhe@buaa.edu.cn

第一作者. E-mail: wuyiyan@buaa.edu.cn

# 1 引言

磁控溅射中沉积粒子能量的调控，一直是低温等离子体物理与表面改性领域共同关注的前沿课题<sup>[1-6]</sup>。近年来，为突破传统高功率脉冲磁控溅射（High power impulse magnetron sputtering, HiPIMS）结合基体偏压技术在复杂构型与绝缘基体镀膜中的应用局限，双极高功率脉冲磁控溅射（Bipolar pulsed HiPIMS, BP-HiPIMS）被提出，为沉积离子能量的有效调控提供了新的途径<sup>[7-9]</sup>。BP-HiPIMS 的核心物理机制在于利用负脉冲结束后施加的正脉冲，对高密度的离子（ $10^{18}\sim 10^{20}\text{ m}^{-3}$ ）进行加速<sup>[10]</sup>。离子能量分布函数（Ion energy distribution function, IEDF）的测量结果证实，BP-HiPIMS 放电过程中会出现一个与外加正脉冲电压（ $U_+$ ）对应的高能离子峰（ $E_{i,h}$ ），二者近似满足  $E_{i,h} \approx eU_+$ <sup>[8,11,12]</sup>。这种高能离子的出现，使得利用 BP-HiPIMS 技术沉积的薄膜相较于传统 HiPIMS 在微观组织、表面粗糙度、膜基结合力以及光电与力学等性能上，均展现出更为优异的综合性能<sup>[13-16]</sup>。此外，与传统的基体偏压辅助沉积技术相比，BP-HiPIMS 有效缓解了负脉冲阶段  $\text{Ar}^+$  轰击基体所诱导的晶格缺陷，从而促使沉积的薄膜展现出更为显著的晶粒细化特征<sup>[11]</sup>。

基于 BP-HiPIMS 技术的众多优势，厘清其复杂的离子加速与运输机制并实现离子能量的精确调控，已成为学术界关注的焦点。尽管已有大量研究借助多种等离子体诊断技术与数值模拟手段，来揭示正脉冲阶段等离子体扩散与粒子运输过程<sup>[12,17-21]</sup>，但关于离子的核心加速区域仍存在多种观点。其中，部分学者认为，离子是在向基体扩散的路径中获得能量<sup>[22,23]</sup>；而另一些观点则指出，离子主要是在基体前的鞘层内进行加速<sup>[17,23,24]</sup>。由于 BP-HiPIMS 脉冲极性切换前后的离子产生、运动过程发生改变，空间电场扰动将带来双极扩散偏离稳态、粒子扩散不稳定性以及空间分布不均等问题，为粒子运动分析带来困难。因此，正脉冲期间空间电位结构演变及其主导的离子加速机制，至今仍是一个亟待深入探究的科学问题。

事实上，离子加速机制与正向脉冲期间等离子体空间电位（ $V_p$ ）的分布密切相关。由于在大于德拜长度的尺度上，等离子体会自发地保持电子与离子密度基本相等，维持空间准中性。因此，当等离子体与带有特定电位（特别是处于正偏压状态）的表面接触时，为了屏蔽外加电场并维持等离子体的电荷平衡，会在交界面处建立非准中性的空间电荷层（即鞘层）<sup>[25]</sup>。这种鞘层结构承担了界面和等离子体间的主要电位降，不仅是驱动离子加速的重要能量来源，也直接决定了空

间中  $V_p$  的大小。迄今为止，针对 BP-HiPIMS 正脉冲阶段处于正偏压状态的靶表面，学界已提出了几种典型的靶前鞘层模型<sup>[26]</sup>，具体如图 1 所示：

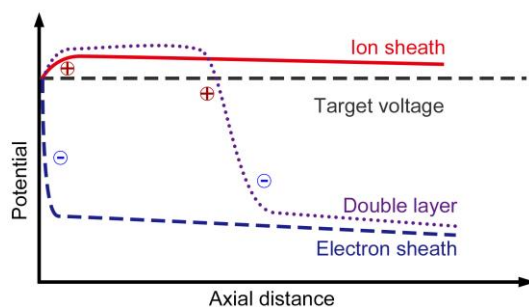


图 1 BP-HiPIMS 放电过程中靶前鞘层类型及对应等离子体电位分布

Fig.1 Sheathes near the target and plasma potential distribution in BP-HiPIMS discharge.

上述几种靶前鞘层与电位构型高度依赖于放电的时序演化与宏观放电参数。在一个完整的 BP-HiPIMS 放电脉冲中，靶前区域经历从负脉冲期间的阴极鞘层，到极性反转期间的鞘层重组，再到正脉冲期间阳极鞘层的动态重构。最终在正向脉冲期间能够稳定建立并维持何种电位构型，取决于放电参数、磁场构型以及靶前初始等离子体密度等条件。其中，施加正脉冲一定时间后，靶前电双层 (Double layer, DL) 结构的形成，是近期通过 PIC-MCC 模拟和 ICCD 高速成像技术获得的一项重要前沿发现<sup>[22,27-31]</sup>。一旦在靶前形成电双层，该边界处的电势降便能使离子获得额外的动能，驱动其加速向基体运动<sup>[32]</sup>。即使在悬浮基体或绝缘材料的镀膜过程中，该机制依旧能有效提升到达基体表面的离子能量，因此被视为一种极具应用潜力的离子加速模式。DL 电位结构的典型特征在于：靠近靶面的区域存在一个高电位区（其等离子体电位可接近甚至超过外加靶电压），随后在近靶区等离子体与远靶区等离子体之间形成空间电位梯度<sup>[24]</sup>。由于该电位降的幅值通常高于背景气体的电离能，低电位区域的电子在越过此边界时可被加速，进而与高电位区域的中性原子发生碰撞电离。基于此，DL 结构本质上是一种伴随局部强发光的阳极自持放电现象<sup>[23,28]</sup>。我们近期的研究结果表明，DL 的建立必须满足基本的朗缪尔条件 (Langmuir condition)，即在边界处离子和电子通量需达到动态平衡<sup>[33]</sup>。值得注意的是，靶面中心前方的非均匀磁场构成了磁镜结构，它会约束并限制电子向正偏压靶面的漂移与输运，进而改变电子通量。正如我们前期基于 PIC-MCC 模型所揭证实的<sup>[27]</sup>，DL 边界一般位于“磁零点 (magnetic null point)”处。结合最近高速相机和朗缪尔探针同步诊断的结果，在正向脉冲期间，伴随着 DL 的建立，空间等离子体电位会发生突降和骤升<sup>[32]</sup>，这一现象直接证实了 DL 结构特征与等离子体空间电位演变之间的耦合关系。

在 BP-HiPIMS 正向脉冲期间，阳极电双层（DL）的建立与演化主导了放电空间的电位重构与粒子的加速动力学过程，是实现沉积离子能量调控的关键。尽管已有相关研究对空间等离子体电位进行了初步测量<sup>[17,22,27,28,31]</sup>，但由于 DL 是一种非准中性的复杂鞘层结构，现有诊断手段往往缺乏足够的时空分辨率，难以完整捕获其物理结构与演化轨迹。因此，针对 DL 基本特征的等离子体研究仍缺乏系统性与高精度的实验数据支撑。鉴于此，本研究旨在从时空分辨的等离子体空间电位测量出发，对 BP-HiPIMS 放电中 DL 的动态形成过程及其受放电参数的调控机制展开探究。本文通过自主研发的高精度发射探针诊断系统，实现空间分辨率~1 mm 以及时间分辨率 200 ns 的等离子体电位测量。依托该系统，本文对从近靶面区域（距靶面~10 mm）直至基体位置（距靶面~80 mm）的整个放电轴向空间内的等离子体电位进行了测量。具体章节安排如下：第 2 章介绍了 BP-HiPIMS 放电系统以及发射探针的诊断测量方法；第 3.1 节阐述了 BP-HiPIMS 放电过程中等离子体电位的时空演变规律与 DL 的结构特征；第 3.2 节探讨了放电参数对 DL 基本特征的影响；第 3.3 节结合质谱测量，揭示了 DL 演化对沉积离子能量分布的调控规律；最后，在第 4 章对全文的主要结论进行了总结。

## 2 BP-HiPIMS 放电与等离子体诊断系统

### 2.1 BP-HiPIMS 放电系统

图 2 给出了本研究所采用的磁控溅射放电与等离子体诊断系统的整体结构示意图。所有实验均在一个内径~600 mm、高度~800 mm 的不锈钢真空室中进行。溅射源采用纯度高达 99.99% 的金属铜（Cu）靶，靶材尺寸为直径 50 mm、厚度 5 mm。为确保大功率脉冲放电条件下靶材的稳定性，靶面背部通过 20°C 的恒温循环水进行冷却。此外，靶材与接地电极之间的间距~3 mm。实验采用非平衡磁场构型（通常界定为 Type II 型），经特斯拉计（Tunkia TD8620）实测标定，在靶面跑道区正上方平行于靶面的径向磁场分量~105 mT，磁零点（magnetic null point）位于靶心上方~25 mm 处。实验准备阶段，由机械泵与分子泵将腔室的本底真空度抽至  $10^{-4}$  Pa。放电过程采用氩气（Ar，纯度 99.999%）作为放电背景气体。在整个测量过程中，氩气的注入速率由质量流量计（Qixing D07-7B）进行调控，同时腔室内的工作气压由薄膜电容真空计（INFICON VGC501）进行实时监测。

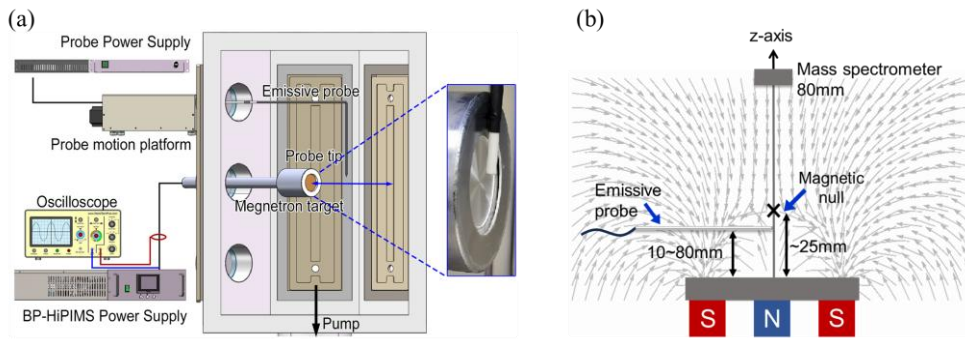


图 2 BP-HiPIMS 放电系统示意图 (a) 实验装置示意图 (b) 对应磁场配置

Fig.2 Schematic of the BP-HiPIMS system (a) experimental setup with the plasma diagnostics and (b) the magnetic-field configuration.

实验选用了自主研发的 BP-HiPIMS 电源 ([APS-BPHiPIMS03](#)<sup>[34]</sup>), 其极限输出参数为: 负向脉冲电压 $-1000\text{ V}$ 、正向脉冲电压 $+400\text{ V}$ 、负脉冲峰值电流  $1600\text{ A}$ 、正脉冲峰值电流  $100\text{ A}$ , 脉冲重复频率范围为  $1\sim 500\text{ Hz}$ 。在实验测量过程中, 靶电压通过  $100:1$  衰减探头 (Agilent 10076B) 进行采集, 相应的靶电流则采用罗氏线圈 (Rogowski coil, CWT) 进行测量。靶电压与靶电流的波形由数字示波器 (Agilent Technologies DSO-X 2024A) 实时记录。需要指出的是, HiPIMS 运行于高度瞬态的异常辉光放电区间, 等离子体内部存在固有的微观不稳定性 (如等离子体轮辐的旋转) 以及脉冲间的波动<sup>[35]</sup>。如果直接提取单次脉冲, 其波形将受到这些物理震荡的干扰, 不利于观察宏观的放电演化规律。因此, 根据 HiPIMS 诊断的常规方法, 本研究中所有的波形数据均经过了示波器内置的 128 次脉冲累加平均处理。这种平均有效滤除了脉冲间的随机放电差异与电磁噪声, 输出的平均波形代表了统计学上的宏观放电轨迹, 充分保证了实验数据的置信度。图 3(a) 给出了靶电压与靶电流波形的一个示例, 包括余晖 (AG) 阶段, 负脉冲 (NP) 阶段和正脉冲 (PP) 阶段。获取该波形的放电参数设定为: 负向脉冲电压 $-500\text{ V}$ , 负向脉冲宽度  $150\text{ }\mu\text{s}$ ; 正向脉冲电压 $+80\text{ V}$ , 正向脉冲宽度  $250\text{ }\mu\text{s}$ ; 脉冲重复频率  $100\text{ Hz}$ , 工作气压  $0.8\text{ Pa}$ 。在所有的测量工况中, 负向脉冲与正向脉冲之间的切换过渡时间均保持在  $1.5\sim 2\text{ }\mu\text{s}$ 。在负脉冲阶段, 靶电流表现为典型的离子电流特征, 在施加正向脉冲后, 电流方向随之发生反转, 符合典型的 BP-HiPIMS 放电特征<sup>[7,22]</sup>。

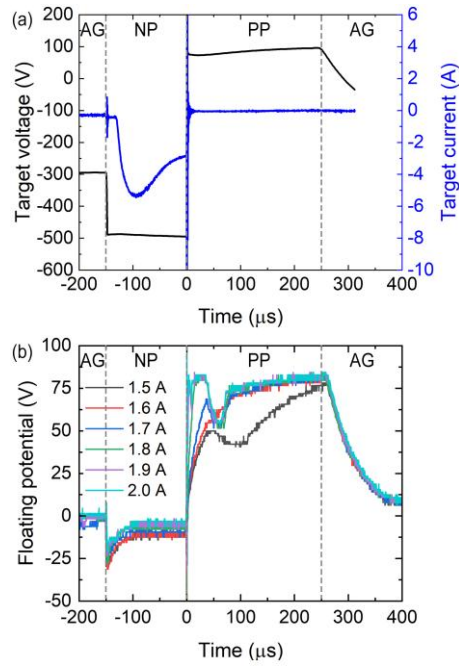


图3 (a) 靶电压和电流波形 (b) 不同加热电流  $I_{ep}$  情况下发射探针悬浮电位波形

Fig.3 The waveforms of (a) the target voltage and current and (b) the floating potential of emissive probe at various heating current  $I_{ep}$

## 2.2 发射探针测量系统

本研究采用自主研发的发射探针诊断系统 ([APD-EP3A](#)<sup>[34]</sup>) 对等离子体空间电位 ( $V_p$ ) 进行测量。该探针测量电路基于传统的焦耳加热型结构设计<sup>[36]</sup>。探针尖端的加热回路采用直径为  $100\ \mu\text{m}$ 、长度为  $8\ \text{mm}$  的钨丝制成, 其与直径  $0.2\ \text{mm}$ 、长度  $100\ \text{mm}$  的铜导线连接, 并被固定在内径  $0.2\ \text{mm}$ 、外径  $0.3\ \text{mm}$  的陶瓷管内部。为精确获取探针丝中点的电位, 电路通过两个等值串联的电阻 ( $R=20\ \Omega$ ) 与发射探针尖端并联, 从其中心节点引出测量信号。同时, 为了确保测量电位的精准读取, 在探针与地 (即真空室) 之间串联接入了一个高阻抗电阻 ( $R=1\ \text{M}\Omega$ )。等离子体电位波形由 100:1 衰减探头 (Agilent 10076B) 采集, 并由数字示波器 (Agilent Technologies DSO-X 2024A) 进行记录。为了获取  $V_p$  的空间分布演变规律, 发射探针沿中心轴线  $z$  轴在距离靶材表面  $10\ \text{mm}$  至  $80\ \text{mm}$  的区间内进行移动探测。在电位梯度变化可能较为剧烈的近靶区域 ( $z=10\sim 25\ \text{mm}$ ), 探针的移动步长设定为  $1\ \text{mm}$ ; 而在远靶区域 ( $z=25\sim 100\ \text{mm}$ ), 移动步长为  $5\ \text{mm}$ 。根据发射探针理论<sup>[36]</sup>和我们之前的实验标定<sup>[28]</sup>, 由于探针的电子发射电流通常仅为毫安量级 (远低于宏观靶电流), 且发射出的电子初始能量较低 ( $\sim 0.2\ \text{eV}$ ), 其会被迅速热化或被局部鞘层约束, 因此对全局等离子体电位结构的扰动可忽略不计。但需要特别指出的是, 探针测量本质上属于侵入式诊断, 当探针极为靠近靶面时 ( $z$

<10 mm), 探针外部的陶瓷管会物理阻碍近靶高密度电离区内电子的  $E \times B$  闭合漂移运动(即干扰了局域的霍尔电流通路), 导致放电电流由原本的 5.5~6 A 骤然下降到不足 4 A。为确保研究结果的严谨性, 在本研究的整个过程中, 仅将未对放电电流波形造成明显扰动, 即靶电流依旧保持 5.5~6 A 的有效探测数据纳入后续的分析与讨论。

在等离子体空间电位的计算方法上, 本文采用文献<sup>[36]</sup>中描述的“饱和电子发射法”来确定等离子体电位。根据 Kemp 和 Sellen 的研究<sup>[37]</sup>, 该方法适用于等离子体密度介于  $10^{11} \sim 10^{18} \text{ m}^{-3}$  范围内的放电。在进行正式测量之前, 必须确定达到饱和电子发射条件的加热电流  $I_{ep}$ 。图 3(b)展示了在图 3(a)所示的放电参数下, 不同加热电流 ( $I_{ep}=1.5 \sim 2.0 \text{ A}$ ) 下测得的探针电位曲线。结果表明, 当  $I_{ep} > 1.7 \text{ A}$  时, 测得的探针悬浮电位达到了饱和状态, 这说明探针已具备足够强烈的热电子发射能力<sup>[36]</sup>。在此高发射状态下, 探针与周围等离子体之间的鞘层压降趋近于零, 探针所测得的悬浮电位可近似等效为该局部区域的等离子体电位  $V_p$ 。然而, 考虑到空间电荷效应对电子发射的限制, 实际测量的等离子体电位通常比真实值低约  $k_B T_e / e$  (其中  $k_B$  为玻尔兹曼常数,  $T_e$  为电子温度)。由于该测量误差与局部电子温度呈线性正相关, 结合前期对 BP-HiPIMS 正脉冲期间电子温度的测量结果<sup>[38]</sup>, 本实验中电位测量误差值范围在 3~8 V。基于上述标定分析, 本研究在后续实验中将探针的加热电流恒定设置为  $I_{ep}=2.0 \text{ A}$ , 以确保测量结果的可靠性。

### 2.3 离子能量分布函数测量

本研究中, 离子能量分布函数 (IEDF) 是通过质谱仪 (Hiden PSM003) 测量的。该仪器在离子经采样孔进入高真空腔室后, 首先由内置的静电能量分析器 (ESA) 筛选出特定动能的离子, 随后进入四极杆质量过滤器, 筛选出特定质荷比的靶离子或气体离子, 最后由二次电子倍增器 (SEM) 进行信号计数。在本实验设定中, 质谱仪的采样孔直径为  $300 \mu\text{m}$ , 正对靶材中心, 二者间距  $\sim 80 \text{ mm}$ 。测量期间, 采样孔保持接地状态 (参考电位设定为  $0 \text{ V}$ ), 内部引出极电压设定为  $-36 \text{ V}$ , 以实现离子的有效引出和汇聚。由于仪器的离子采集立体角较窄 (接受半角通常  $\leq 5^\circ$ ), 其主要收集垂直于采样孔方向且未发生明显碰撞的离子流。在测量精度方面, 该质谱仪的质量分辨率设定为  $\sim 1 \text{ amu}$ 。在不同的磁控放电参数下, 实验针对溅射金属离子 ( $\text{Cu}^+$ ) 采集了时间平均 IEDF。尽管该系统的绝对离子传输函数 (Transmission function) 未作标定, 但对于同种离子 ( $\text{Cu}^+$ ), 其传输率在不同参数下保持恒定, 因此满足对比分析 IEDF 相对演变规律的需求。测量的能

量扫描范围设定为 0.1~300 eV, 步长为 0.1 eV; 每个数据点的采集驻留时间为 100 ms。鉴于本实验的脉冲频率始终设定为 100 Hz, 这意味着每个能量数据点均是由连续 10 个脉冲周期的离子信号在硬件层面累加积分而得。与示波器波形的系综平均原理相同, 这种多脉冲周期的原位累加平均有效滤除了异常辉光放电中等离子体的随机涨落与微观不稳定性, 所获取的输出能谱本身即代表了宏观离子能量特征, 从而确保了测量数据的置信度。

### 3 结果与讨论

#### 3.1 BP-HiPIMS中等离子体电位演化及电双层的形成特征

在我们前期的研究工作中, 已采用 PIC-MCC 模拟对阳极电双层 (DL) 的动态形成过程进行了仿真与理论探讨<sup>[27]</sup>。为在此基础上实现对靶前 DL 真实电位结构的实验确证, 在本节中利用第 2.2 节所述的发射探针诊断系统, 测量了不同轴向空间位置处的等离子体电位 ( $V_p$ ), 探针测量范围为靶上方  $z=10\sim 80$  mm。BP-HiPIMS 的放电参数设定为: 负向脉冲宽度 100  $\mu\text{s}$ 、电压 -600 V; 正向脉冲宽度 250  $\mu\text{s}$ 、电压 +150 V; 频率保持在 100 Hz, 工作气压 0.8 Pa。

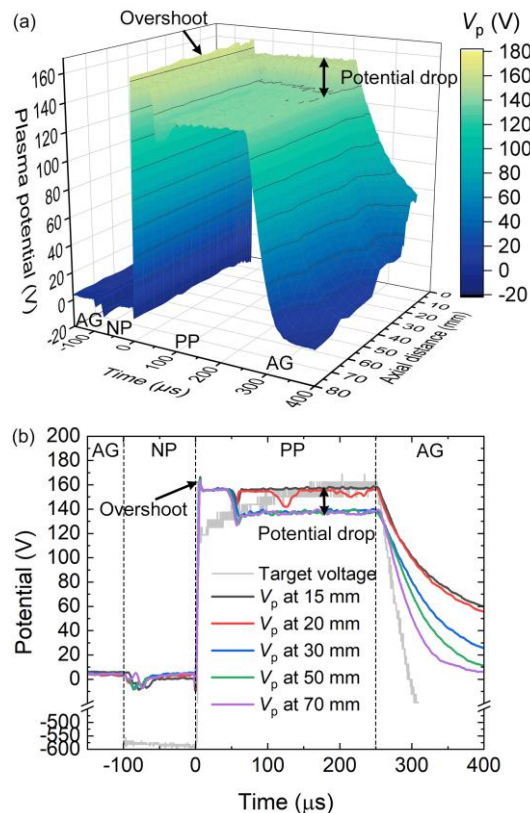


图 4 放电期间等离子体电位的时空演变: (a) 三维时空分布特征; (b) 不同轴向位置处等离子体电位的时间演变及对应靶电压

Fig.4 Spatiotemporal evolution of  $V_p$  during the discharge: (a) 3D spatiotemporal distribution of  $V_p$ ; (b) Temporal evolution of  $V_p$  at different axial positions and the target voltage.

图 4(a)和 4(b)展示了所测得的等离子体电位  $V_p$  在不同轴向位置下的动态演化特征。与放电波形相似，整个放电周期可划分为负脉冲（NP）、正脉冲（PP）及余辉（AG）三个具有显著差异的物理演化阶段。在负脉冲（即常规 HiPIMS 放电）初始阶段， $V_p$  呈现负值偏离。这主要由于放电初期欧姆加热和鞘层演化导致电子温度较高<sup>[39]</sup>，探针悬浮电位与真实等离子体电位之间产生了较大的空间电荷限制偏差。随着放电进行，碰撞概率的提高使电子温度逐渐冷却（ $\sim 2$  eV），此时探针的测量结果可以反映出真实的  $V_p$ ，整个探测空间内的  $V_p$  保持在稍大于地电位的稳定水平（约+7 V）。这一特征与典型的 HiPIMS 放电等离子体环境一致<sup>[39,40]</sup>，表明此时靶与等离子体之间的压降几乎全部集中在靶前鞘层区域中<sup>[35]</sup>，局部电场维持高能正离子对靶面的高效溅射轰击。

当外加靶电压反转切换至正向脉冲时，等离子体对突变的正向电场做出响应，进入 PP 阶段。如图 4(b)所示，在正脉冲开启的微秒级时间内，所有测量位置的  $V_p$  经历了一个短暂的空间电位“过冲（Overshoot）”，随后维持在一个略大于靶电位的值。随着正脉冲时间的进一步推移， $V_p$  的演化轨迹出现了空间依赖性：近靶区的  $V_p$  率先开始上升至接近外加靶电压的水平，并在剩余的整个正脉冲期间持续维持在该高电位状态；而远离靶面的  $V_p$  则在经历更长时间、更大幅度的下降过程后略有升高，在剩余正脉冲期间稳定在一个低于外加靶电压的电位平台上。两者在空间上形成了一个约 20 V 的电位梯度（Potential drop）。这一直接测量结果与现有文献中关于 BP-HiPIMS 正脉冲期间局部等离子体电位的时间演化过程是一致的<sup>[17,31]</sup>。这种在时域演变特征，从实验角度证实了在正向脉冲期间，靶前 DL 结构经历了一个建立到动态维持的演化周期。

当正向脉冲关断，放电进入余辉（AG）阶段，图 4(a)和 4(b)均显示各空间位置的高电位迅速崩塌，衰减并逐步回落至接近初始状态的低电位水平。这说明随着外加正向电压的消失，原有的电双层（DL）结构迅速瓦解。此时，等离子体受密度梯度主导，在空间内进行双极性扩散与复合衰减，系统重新回归无强外场干预的准中性环境。

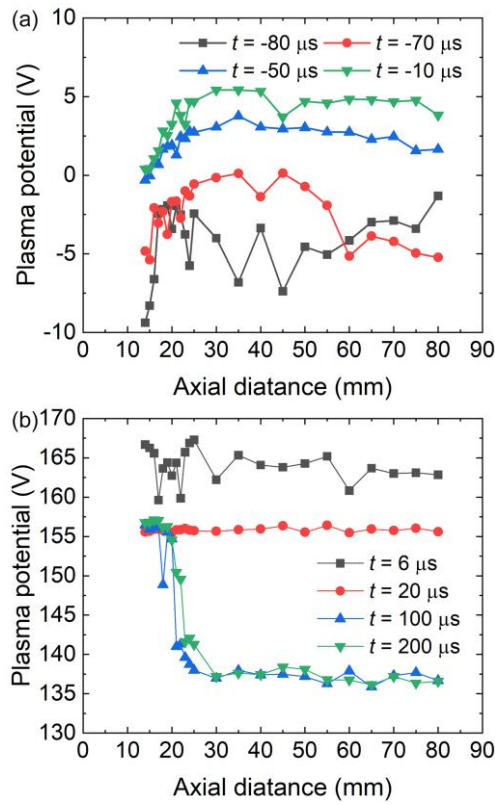


图 5 不同时刻等离子体电位轴向分布特征: (a) 负脉冲期间; (b) 正脉冲期间  
 Fig.5 Axial spatial distribution of  $V_p$  at various times: (a) during the negative pulse; (b) during the positive pulse.

图 5 进一步展示了在负脉冲和正脉冲的不同时刻下,  $V_p$  沿轴向的空间分布情况。如图 5(a)所示, 在负脉冲期间, 等离子体将会在靶前形成离子鞘来屏蔽靶上施加的负电位。当极性反转切换为正脉冲后 (图 5(b)), 在放电的初始阶段 ( $t=6 \mu\text{s}$  与  $t=20 \mu\text{s}$ ), 轴向  $V_p$  整体同步升高, 其幅值略高于外加正电压。此时, 系统的主要电位梯度集中在接地电极与真空室器壁附近。随着放电演化至正脉冲的中后期 ( $t=100 \mu\text{s}$  和  $t=250 \mu\text{s}$ ), 空间电位分布发生了重构。随着探针沿轴向基体方向移动,  $V_p$  出现了阶跃式突降, 将放电空间划分为靠近靶面且电位接近靶电压的高电位区 ( $z < 25 \text{ mm}$ ) 和远离靶面的低电位区域 ( $z = 25 \sim 80 \text{ mm}$ )。在这两个区域之间, 形成幅值  $\sim 20 \text{ V}$  的空间电位梯度区域, 为典型的电双层结构<sup>[41,42]</sup>。值得强调的是, 由于 DL 结构的鞘层特征, 这种包含完整边界电位梯度的空间电位结构, 在以往的等离子体诊断研究中并没有被直接且完整地测量到。这一测量结果不仅证实了图 4(a)中观测到的时域  $V_p$  下降和上升并非重组为电子鞘层, 而是空间 DL 结构形成的结果, 也使得我们可以直接从电位分布角度探究 DL 边界的变化规律。一旦 DL 电位结构建立, 其边界处的空间电位压降可以转化为跨越该边界离子的轴向加速动能, 不仅是实现沉积离子宏观增能的驱动力, 也为后续分析高能离子峰的能量偏移提供了直接的实验依据。

### 3.2 放电参数对电双层形成特征的影响

负脉冲宽度  $\tau_-$  作为 BP-HiPIMS 放电中的重要参量之一，决定了靶前物种的组分演变（如气体稀薄效应的强度与溅射金属原子的占比）及其离化状态<sup>[34,43]</sup>，而正脉冲电压  $U_+$  构成了驱动电子跨场输运与自持放电的外部电场<sup>[44,38]</sup>。因此，本节在不同的正脉冲电压（ $U_+=+150\text{V}$  和  $U_+=+250\text{V}$ ）条件下，研究了负脉冲宽度（ $\tau_-=25\sim 200\ \mu\text{s}$ ）对等离子体电位演化轨迹及靶前 DL 结构特征的影响。相应的靶电压与靶电流放电波形如图 6(a)所示。实验中保持恒定的放电频率 100 Hz，负向脉冲电压  $-600\ \text{V}$ ，正脉冲宽度保持  $250\ \mu\text{s}$ ，工作气压为  $0.8\ \text{Pa}$ 。鉴于 HiPIMS 余辉阶段等离子体的粒子衰减过程较快， $10\ \text{ms}$  的脉冲间歇足以使空间等离子体在下一个周期开启前衰减至相似的准中性基准水平，确保了放电参数影响规律的独立性与可靠性。为了增强图的直观性与可比性，图 6 中时间轴的原点（即零时刻）被统一设定在正脉冲开启的瞬间。如图 6(b)所示，在所有测试工况下，靶电流的峰值幅值均稳定维持在  $5.5\sim 6\ \text{A}$ 。

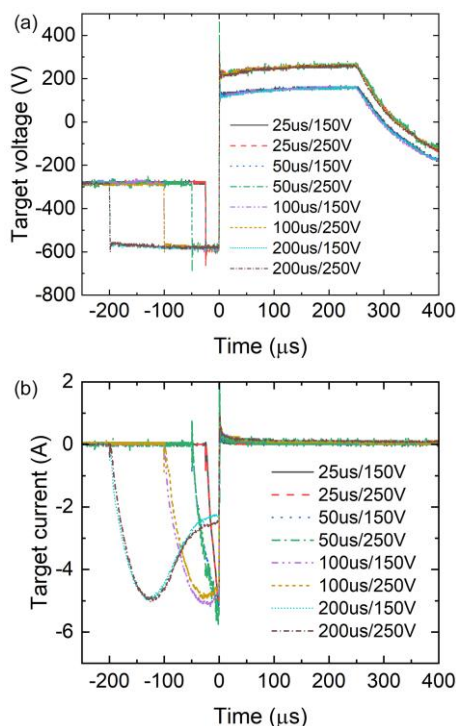


图 6 不同放电参数下 BP-HiPIMS 放电特征曲线

Fig.6 The temporal evolution of discharge voltage and discharge current in BP-HiPIMS discharge

图 7(a)展示了不同放电参数下轴向  $V_p$  的空间分布特征和时间演化过程，可以发现，在所有的放电参数下，DL 电位结构的建立都并非在正脉冲开启瞬间完成的，而是经历了一个动态的演化重构期。进一步的参数对比显示，随着  $\tau_-$  的逐渐增加，DL 形成所需的时间呈现出缩短的趋势；当  $U_+$  提升时，在相同  $\tau_-$  下 DL 形

成所需的时间也明显减少。这说明 DL 的形成是空间粒子种类与正向电场相互作用的结果。具体而言，负脉冲的脉宽  $\tau_-$  主要影响了正脉冲开启时靶前的初始物种。由于负脉冲期间高功率溅射引发的气体稀薄效应<sup>[45]</sup>，较长的  $\tau_-$  使得靶前的气体原子数量减少<sup>[46,47]</sup>，同时增加由于自溅射而产生的金属原子数量<sup>[48]</sup>。因此，在较长的  $\tau_-$  情况下，金属原子成为建立 DL 过程中主要被电离的物种。由于金属原子的电离能（Cu:  $\sim 7.68$  eV）要低于气体原子的电离能（Ar:  $\sim 15.76$  eV），因此这种以低电离能金属原子为主导的靶前环境，使得系统在正脉冲期间能够以更低的能量阈值点燃阳极放电，从而缩短了建立 DL 结构所需的时间。另一方面，当正脉冲幅值从  $U_+ = +150$  V 提升至  $U_+ = +250$  V 时，施加在等离子体上的局域排斥电场增强，这不仅使跨越边界的电子获得更高的能量来电离靶前原子，还加速了靶前等离子体的密度衰减速率<sup>[15,49]</sup>。根据经典阳极放电理论<sup>[50]</sup>，高、低电位侧之间较小的等离子体密度梯度有助于在更低的阈值条件下激发 DL。因此，较大的  $U_+$  形成了更强的跨场加速与更快的密度衰减，共同促使 DL 结构在更短的时域内形成。

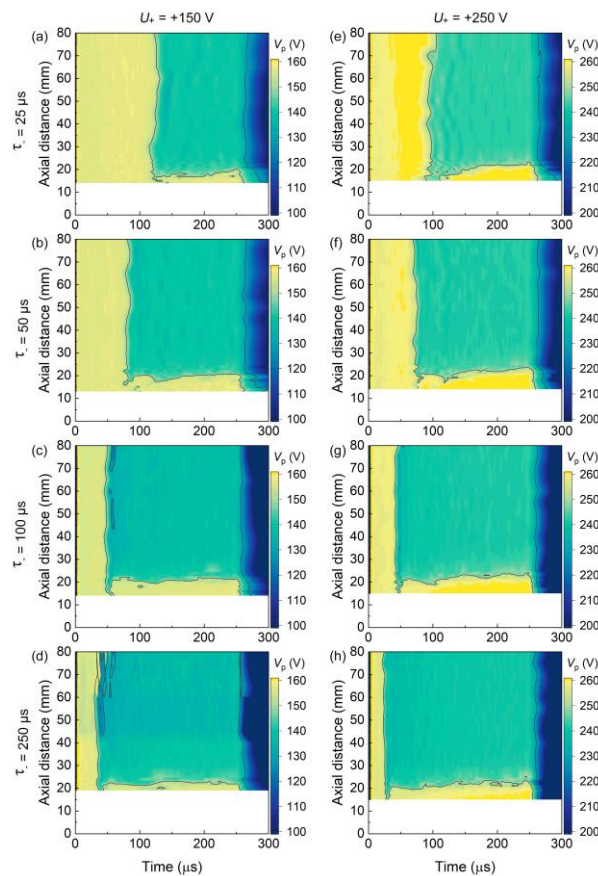


图 7 不同负脉冲宽度 ( $\tau_-$ ) 和正脉冲电压 ( $U_+$ ) 下轴向电位结构的演化特征  
 Fig.7 Spatiotemporal evolution characteristics of plasma potential under different negative pulse widths ( $\tau_-$ ) and positive pulse voltages ( $U_+$ ).

图 8 对比了正脉冲初期 (DL 形成前) 与后期 (DL 形成后) 空间电位分布随放电参数的变化。在正脉冲初期,  $V_p$  在空间上分布均匀, 各位置的  $V_p$  都同步升高到略高于  $U_+$  的值。在  $U_+=+150\text{ V}$  时 (图 8(a)),  $V_p$  保持在  $\sim 156\text{ V}$ , 在  $U_+=+250\text{ V}$  时 (图 8(c)),  $V_p$  提高到  $\sim 257\text{ V}$ , 说明提高正脉冲电压可以有效提高等离子体电位。在相同的  $U_+$  下,  $V_p$  值随着  $\tau$  的增加仅略有下降, 变化的值很小 ( $\sim 4\text{ V}$ ), 处于探针诊断系统的测量误差范围内。这说明由  $\tau$  决定的 DL 建立初期电离的原子种类对等离子体电位的影响很小, 而外加正向脉冲电场 ( $U_+$ ) 对等离子体电位有决定性的作用。

随着放电进入正脉冲的中后期, 不同放电参数下靶前均建立了 DL 结构。对比对比图 8(b)与图 8(d)中的 DL 电位特征可以发现, 外加正向电压的提升将会影响 DL 边界的空间电位差。当  $U_+=+150\text{ V}$  时, DL 边界电位降  $\sim 19\text{ V}$ , 而当  $U_+=+250\text{ V}$ , 该局部空间压降进一步扩大至  $\sim 22\text{ V}$ 。这一随正向靶电压同步增长的演化规律, 与前期文献中观测到的 DL 边界压降特征 (甚至可达到  $\sim 28\text{ V}$ ) 相似<sup>[28]</sup>。这说明提高  $U_+$  可以增加等离子体内部电场, 从而在一定程度上增加离子穿越电场时获得的能量。

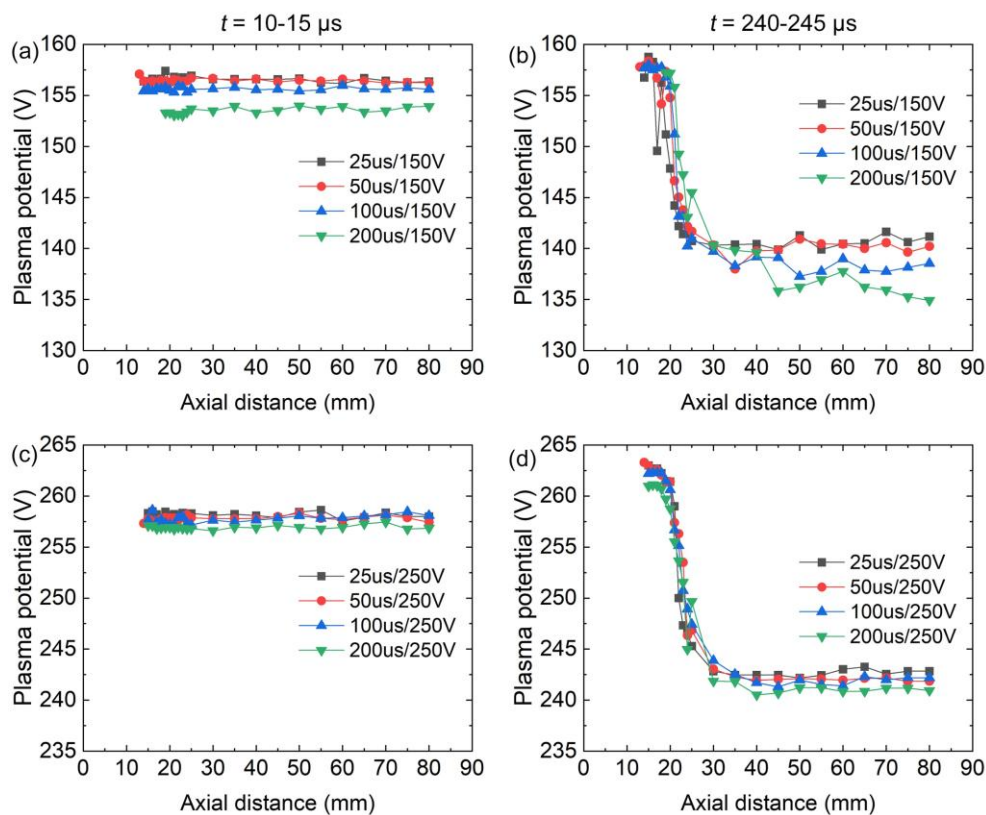


图 8 不同放电参数下正脉冲初期与后期的等离子体电位空间分布特征  
Fig.8 Spatial distribution characteristics of plasma potential at the early and late stages of the positive pulse under different discharge parameters.

此外, 尽管放电参数  $U_+$  和  $\tau$  发生了显著的变化, DL 边界位置却基本没有发

生改变，始终维持在 20~25 mm 的磁零点附近。在这一特定空间区域，磁力线拓扑结构发生显著转变，如图 2(b)所示。在正脉冲开启时，靶转变为阳极，靶前空间的电子在电场驱动下向靶面运动以形成闭合放电回路。然而，磁场在靶前形成磁镜结构，不仅使得部分能量较低电子在向靶运输的过程中被反弹并堆积于磁零点附近<sup>[27]</sup>，还影响了电子的迁移率。从流体模型的角度来看，电子的跨场迁移率可由式(1)描述<sup>[51]</sup>：

$$\mu_{\perp} = \frac{\mu_e}{1 + (\omega_{ce}\tau_e)^2} \quad (1)$$

其中， $\mu_e$  为无磁场时的迁移率， $\omega_{ce}$  为电子回旋频率（正比于磁场强度）， $\tau_e$  为电子碰撞时间。在磁零点区域，由于磁力线几乎完全平行于靶面（即磁场方向与电子的轴向漂移方向高度垂直），导致该处的迁移率为局部最低值，进而形成了一个电子输运“瓶颈”。体系中的电子电流可以由式(2)描述：

$$J_e = en\mu_{\perp}E \quad (2)$$

其中， $E$  为电场强度， $\mu_{\perp}$  为公式(1)中描述的电子迁移率。为了在较低的迁移率下维持放电回路的电流连续性，等离子体系统通过自组织效应，在该处激发出一个局部的强电场，以补偿输运阻力。这一物理机制在宏观上就表现为等离子体电位的阶跃式突降，即 DL 边界。这种固有的磁场结构决定了跨场输运的阻力分布，且不会因体系粒子种类的变化或外加电场的改变而发生明显的空间漂移，从而为高电位区域内电子的高频碰撞电离（即自持阳极放电）以及边界处的跨场粒子通量平衡，提供了物理条件。

为了更直观地展现不同正向电压下电双层（DL）的空间形态特征及其与局部电位的物理关联，图 9 展示了气压保持在 0.8 Pa 下，靶电压从 +300 V 增加至 +395 V 时的直流阳极放电图像及归一化灰度等高线图。本实验中的放电图像采用高分辨率数码相机（Nikon D7200）搭配定焦镜头（AF-S NIKKOR 50mm f/1.8G）进行拍摄。为保证视场的一致性与空间标定的准确性，相机镜头至腔室中心靶面的物理拍摄距离固定为约 300 mm，单次采集的曝光时间设定为 1 ms。由于本部分光学观测的核心目的在于对 DL 的宏观空间形态与拓扑边界进行定性分析，并不涉及对发光绝对强度的定量计算；加之直流阳极放电本身具备较高的发光强度与较好的信噪比，因此实验中未进行专门的本底噪声测量与扣除处理，这并不会影响灰度梯度及边界特征提取的准确性。

在获取原始的相机拍摄图像（彩色图片）后，通过 MATLAB 软件首先将彩

色图像转化为双精度灰度矩阵，随后，对该矩阵进行归一化处理，将全局发光强度映射至 0~1 的相对数值区间。针对 DL 结构发光边界与电位边界的对应关系，根据此前阳极放电等离子体的相关理论<sup>[26]</sup>，低电位区的电子在穿过 DL 电位降层时被加速，当其能量超过中性气体的激发与电离阈值时，便会通过非弹性碰撞在宏观上产生光发射。因此，等离子体放电发光强度的空间阶跃可以映射 DL 边界即电子获得能量电场所在的位置。基于此物理机制，本研究认为归一化灰度矩阵中梯度最大（即发光强度发生最陡峭阶跃）的等高线轮廓即近似为电双层边界的物理位置（如图 9 中红色轮廓的标识）。

从该发光边界的空间形态演变来看，与在 BP-HiPIMS 条件下拍摄得到的形态相似<sup>[22,31]</sup>，直流阳极放电下 DL 高电位区域呈现出“水滴型”特征。随着施加的正向电压逐渐升高，围绕在靶前的高亮 DL 高电位区边界呈现出侧向（左右）扩张趋势，但其顶点基本维持在同一空间位置。在较低的正电压（+300 V）下，发光边界的灰度梯度相对平缓，表明 DL 边界区域的过渡呈现出一定程度的弥散状态；而当正向电压显著提升时，发光区域与外部暗区之间的过渡变得极度锐利，发光边界处的灰度值发生了更加陡峭的阶跃。结合前文关于空间电位  $V_p$  分布的结论可知，当正电压升高时，DL 边界处的压降随之增大，电子在更强的边界电场中被加速，获得了更高能量，导致在高电位区域边缘的激发与电离反应更加剧烈且集中，呈现出更为明亮且界限分明的发光边界。同时，为了维持低电位区域体等离子体的准中性，系统通过向外推移空间电荷层并重构电势梯度来建立一个更强的局域电场，从视觉上即表现为高电压下发光灰度梯度的陡峭化。

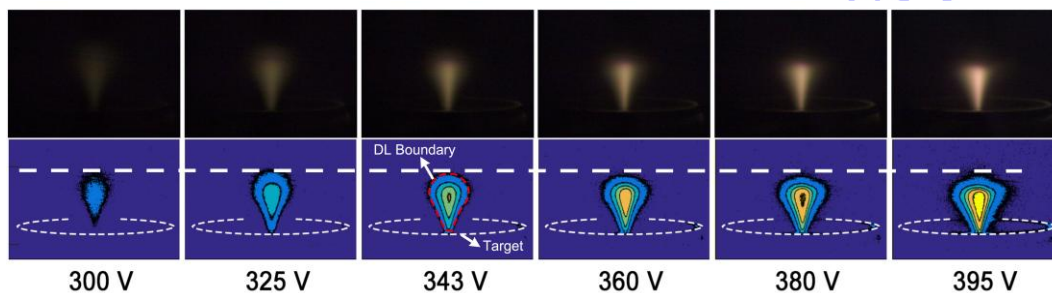


图 9 不同电压下直流阳极电双层结构的图片与对应的光强灰度分布图

Fig.9 Optical photographs and corresponding 2D light intensity distribution maps of the DC anode double layer under different applied voltages.

### 3.3 电双层的形成对离子能量的影响

图 10 显示了在不同正向脉冲电压幅值（ $U_+=+150\text{ V}$  与  $U_+=+250\text{ V}$ ）和不同负脉宽  $\tau_-$ （ $\tau_-=25\sim 200\ \mu\text{s}$ ）测得的  $\text{Cu}^+$  离子的 IEDF 曲线。在此图中，所有的 IEDF

曲线都呈现出明显的低能峰 E1 (Energy < 25 eV) 和高能峰 E2 和 E3 (Energy > 25 eV)。其中, E1 峰主要由负脉冲期间和少量余晖期间到达质谱仪的离子组成, 其分布形态与传统 HiPIMS 放电的 IEDF 相似<sup>[52,53]</sup>, 峰值和能量分布范围并不随  $U_+$  的变化而变化。然而, 随着  $\tau_-$  的增加, E1 峰的绝对强度 (即低能离子通量) 显著增加。高能峰 E2 和 E3 则是 BP-HiPIMS 正脉冲期间重新形成的离子能量峰, 其中, E3 峰的峰值能量恰好对应于正脉冲的电压值 ( $E3 \approx eU_+$ )。当  $U_+$  从 +150 V 提升至 +250 V 时, E3 峰的中心位置发生了显著的高能向漂移。这一高能离子群主要由两部分构成: 一是正脉冲开启瞬间 (电位过冲期) 到达质谱仪的离子, 二是在靶前高电位区被电离产生的离子。在 DL 高电位区产生的离子在向接地的质谱仪 (基体) 输运时, 跨越了探针测得的 DL 边界处空间势垒, 获得了能量增益, 随后其还在质谱仪表面 (基体) 鞘层中获得另一部分加速能量, 总和近似等于体系的最大空间电位差 ( $\approx eU_+$ )。相对离散的 E2 峰, 则主要反映了正脉冲期间鞘层动态重建过程中, 或处于不同空间电位阶梯处的离子所获得的中间态能量。

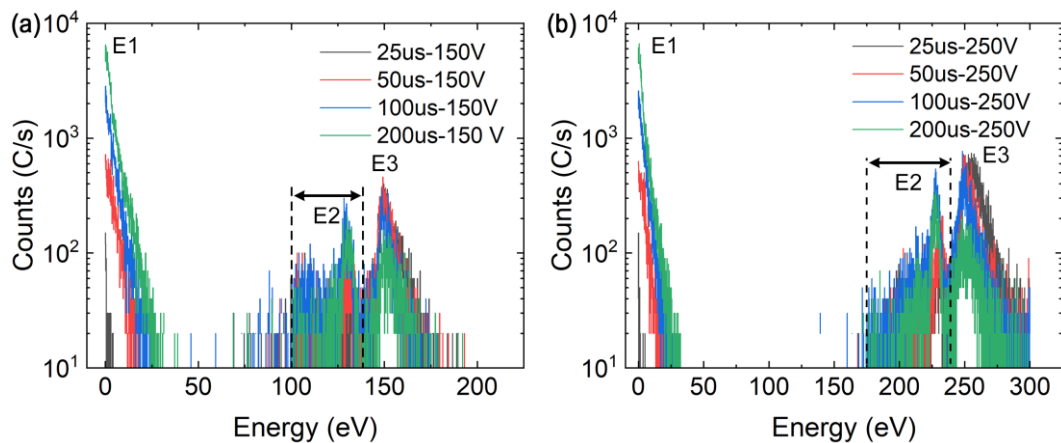


图 10 不同放电参数下离子能量分布函数 (IEDFs): (a)  $U_+ = +150V$ ; (b)  $U_+ = +250V$   
 Fig.10 Ion energy distribution functions (IEDFs) under different discharge parameters: (a)  $U_+ = +150V$ ; (b)  $U_+ = +250V$ .

为了进一步探究放电参数对于沉积离子增能效果的作用, 图 11 统计了不同工况下高能离子 (Energy > 25 eV) 相对占比的演变趋势。结果表明, 在相同的  $\tau_-$  下,  $U_+ = +250V$  下的高能离子占比始终高于  $U_+ = +150V$  的情况。此外, 在相同的  $U_+$  下, 高能离子的相对占比均随  $\tau_-$  增加而递减。这一统计规律是由离子的飞行时间 (Time of flight, TOF) 与 DL 的动态演化时间共同决定的。一方面, 根据经典 HiPIMS 放电理论, 溅射离子的初始轴向速度约 2~3 km/s<sup>[40]</sup>。据此估算, 在不考虑碰撞的情况下离子从电离到运动到质谱仪的 TOF 约为 25~40  $\mu s$ 。因此, 当设定的负脉宽较短 ( $\tau_- = 25 \mu s$ ) 时, 负脉冲期间产生的大部分离子在抵达基体前, 靶已完成了极性反转。这意味着绝大多数离子均在正脉冲开启后的电场作用下到

达质谱仪，从而表现出超过 90% 的高能离子占比。然而，随着  $\tau^-$  的增加，越来越多的离子在正向电场建立前就已完成了跨越靶基距的输运。这部分离子未受正向电场的加速，低能离子的基数增加，从而导致了高能离子相对占比的下降。另一方面，高能离子占比的演变规律也受到 DL 形成过程中离子加速行为的影响。 $U_+$  的提升不仅提高了等离子体电位，也增加了 DL 边界处的空间电位降，为跨越该边界的离子提供了更强的局域电场。此外，在更高的  $U_+$  下，DL 的形成时间也缩短，更多的离子可以在 DL 结构高电位侧产生并被边界电场中被加速，获得了与 DL 边界压降近乎相同的动能，从而表现为 IEDF 峰值能量的提高与高能离子群体的增加。

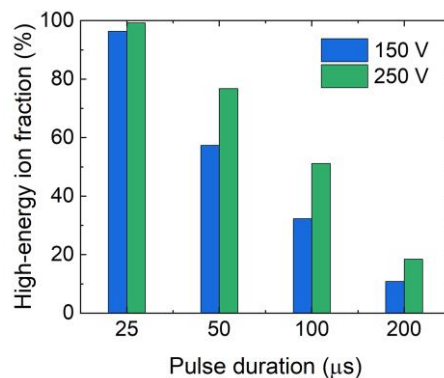


图 11 不同放电参数下高能离子占比

Fig.11 High-energy ion fraction under different discharge parameters.

## 4 结 论

本文利用高分辨率的发射探针及质谱系统，对 BP-HiPIMS 放电中等离子体空间电位的时空演变及离子能量分布进行了系统测量与分析，揭示了正脉冲期间阳极电双层 (DL) 的形成特征及其对沉积离子能量的调控规律。实验及放电图像表明，受磁场拓扑引起的跨场输运阻力约束，该 DL 结构的高低电位边界始终稳定在距靶面 20~25 mm 的磁零点附近，表现出不随外加参数改变而明显漂移的物理鲁棒性。在此基础上，探究了宏观放电参数对 DL 特征及离子增能规律的调控机制。一方面，提高正向脉冲电压 ( $U_+$ ) 不仅会增大 DL 边界处的空间压降，也会缩短 DL 建立时间，延长了离子在 DL 建立后的有效加速时间窗口，使得高能离子的占比提高。另一方面，增加负脉冲宽度 ( $\tau^-$ ) 虽加剧了气体稀薄效应并增加靶材溅射过程，使低电离能金属原子在正脉冲体系中占比更高，从而有效缩短了 DL 的形成时间，但大量未经正向电场加速的离子扩散至基体，增加了低能离子的基数，导致高能离子的相对占比呈单调递减规律。因此，在实际应用中，可以通过较短的负脉冲宽度和较高的正脉冲幅值来提高达到基体位置的离子能量。

同时,也需要考虑基体位置和离子飞行时间,兼顾镀膜过程中的离子能量和离子流量。

本工作通过直接的电位测量为电双层的基本电位结构和演化规律提供了实验证据,同时初步探究了其演化过程与粒子增能之间的关系。在未来的研究中,我们将进一步结合光学诊断技术和多种靶材体系,进一步探明电双层的拓扑结构演变机制及其对多元薄膜元素化学计量比的调控规律,进一步理清 BP-HIPIMS 放电中 DL 等离子体的特性和复杂的离子加速机制,为沉积工艺优化提供理论支撑。

## 参考文献

- [1] [Lundin D, Sarakinos K 2012 \*J. Mater. Res.\* \*\*27\*\* 780](#)
- [2] [Sarakinos K, Alami J, Konstantinidis S 2010 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*204\*\* 1661](#)
- [3] [Anders A 2017 \*J. Appl. Phys.\* \*\*121\*\* 171101](#)
- [4] [Kouznetsov V, Macák K, Schneider J M, Helmersson U, Petrov I 1999 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*122\*\* 290](#)
- [5] [Gudmundsson J T 2020 \*Plasma Sources Sci. Technol.\* \*\*29\*\* 113001](#)
- [6] [Helmersson U, Lattemann M, Bohlmark J, Ehiasarian A P, Gudmundsson J T 2006 \*Thin Solid Films\* \*\*513\*\* 1](#)
- [7] [Wu B, Haehnlein I, Shchelkanov I, McLain J, Patel D, Uhlig J, Jurczyk B, Leng Y, Ruzic D N 2018 \*Vacuum\* \*\*150\*\* 216](#)
- [8] [Viloan R P B, Gu J, Boyd R, Keraudy J, Li L, Helmersson U 2019 \*Thin Solid Films\* \*\*688\*\* 137350](#)
- [9] [Li L, Gu J, Xu Y, Han M, Marie Bilek M M 2022 \*Vacuum\* \*\*204\*\* 111383](#)
- [10] [Ganesan R, Fernandez-Martinez I, Akhavan B, Matthews D T A, Sergachev D, Stueber M, McKenzie D R, Bilek M M M 2023 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*454\*\* 129199](#)
- [11] [Batková Š, Čapek J, Rezek J, Čerstvý R, Zeman P 2020 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*393\*\* 125773](#)
- [12] [Keraudy J, Viloan R P B, Raadu M A, Brenning N, Lundin D, Helmersson U 2019 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*359\*\* 433](#)
- [13] [Viloan R P B, Helmersson U, Lundin D 2021 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*422\*\* 127487](#)
- [14] [Velicu I-L, Ianoş G T, Porosnicu C, Mihăilă I, Burducea I, Velea A, Cristea D, Munteanu D, Tiron V 2019 \*Surf. Coat. Technol.\* \*\*359\*\* 97](#)
- [15] [Britun N, Michiels M, Godfroid T, Snyders R 2018 \*Appl. Phys. Lett.\* \*\*112\*\* 234103](#)
- [16] [Tiron V, Ursu E-L, Cristea D, Munteanu D, Bulai G, Ceban A, Velicu I-L 2019 \*Appl. Surf. Sci.\* \*\*494\*\* 871](#)
- [17] [Zanáška M, Lundin D, Brenning N, Du H, Dvořák P, Vašina P, Helmersson U 2022 \*Plasma Sources Sci. Technol.\* \*\*31\*\* 025007](#)
- [18] [Kozák T, Pajdarová A D, Čada M, Hubička Z, Mareš P, Čapek J 2020 \*Plasma Sources Sci. Technol.\* \*\*29\*\* 065003](#)

- [19] Hippler R, Cada M, Stranak V, Hubicka Z 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 115020
- [20] Avino F, Manke F, Richard T, Sublet A 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 115015
- [21] Law M A, Lockwood Estrin F, Bowden M D, Bradley J W 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 105019
- [22] Law M A, Lockwood Estrin F, Bryant P M, Bowden M D, Bradley J W 2023 *Plasma Sources Sci. Technol.* **32** 025015
- [23] Farahani M, Kozák T, Pajdarová A D, Čapek J 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 06LT02
- [24] Tiron V, Velicu I-L 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 015003
- [25] Tonks L, Langmuir I 1929 *Phys. Rev.* **33** 195
- [26] Baalrud S D, Scheiner B, Yee B T, Hopkins M M, Barnat E 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 053001
- [27] Han M, Luo Y, Li H, Tang L, Li D, Gu J, Li L, Xu Y, Luo S 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 105014
- [28] Luo Y, Han M, Li D, Tang L, Li H, Li L, Wang W, Deng D, Gu J, Li G 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 105007
- [29] Han M, Luo Y, Tang L, Gu J, Li H, Xu Y, Luo S, Li L 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 115002
- [30] Han M, Luo Y, Li L, Li H, Xu Y, Luo S 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 025016
- [31] Pajdarová A D, Kozák T, Tölg T, Čapek J 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 055007
- [32] Farahani M, Kozák T, Pajdarová A D, Tölg T, Čapek J 2025 *Plasma Sources Sci. Technol.* **34** 03LT02
- [33] Mott-smith H M 1961 Electrical Discharge, 1961-01-01 pp99–132
- [34] Han M, Luo Y, Li L, Gu J, Xu Y, Luo S 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 095016
- [35] Anders A 2011 *Surf. Coat. Technol.* **205** S1
- [36] Sheehan J P, Hershkowitz N 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 063001
- [37] [Kemp, Robert F 1966 \*Rev. Sci. Instrum.\* \*\*37\*\* 455](#)
- [38] Luo Y, Han M, Wu Y, Gao P, Li L 2025 *Plasma Sources Sci. Technol.* **34** 025002
- [39] Han M, Luo Y, Li H, Xu Y, Luo S, Xu H, Xu C, Li L 2020 *Surf. Coat. Technol.* **403** 126371
- [40] Poolcharuansin P, Bradley J 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 025010
- [41] Langmuir I 1929 *Phys. Rev.* **33** 954
- [42] Song B, Angelo N D, Merlino R L 1991 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **24** 1789
- [43] Viloan R P B, Zanáška M, Lundin D, Helmersson U 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 125013
- [44] [Baalrud S D, Hershkowitz N, Longmier B 2007 \*Phys. Plasmas\* \*\*14\*\* 042109](#)
- [45] [Kadlec S 2007 \*Plasma Process. Polym.\* \*\*4\*\* S419](#)
- [46] Kozák T, Lazar J 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 115012
- [47] Huo C Q, Raadu M A, Lundin D, Gudmundsson J T, Anders A, Brenning N 2012 *Plasma Sources Sci. Technol.* **21** 045004

- [48] Brenning N, Gudmundsson J T, Raadu M A, Petty T J, Minea T, Lundin D 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 125003
- [49] Michiels M, Godfroid T, Snyders R, Britun N 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 435205
- [50] [Mitra V, Sarma B, Sarma A, Janaki M S, Sekar Iyengar A N 2016 \*Phys. Plasmas\* \*\*23\*\* 032304](#)
- [51] Hagelaar G J M 2007 *Plasma Sources Sci. Technol.* **16** S57
- [52] Bohlmark J, Lattemann M, Gudmundsson J T, Ehasarian A P, Aranda Gonzalvo Y, Brenning N, Helmersson U 2006 *Thin Solid Films* **515** 1522
- [53] Hecimovic A, Burcalova K, Ehasarian A P 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 095203

录用稿件，非最终出版稿

# Basic Characteristics of the Double Layer and Ion Energy in Bipolar pulse HiPIMS\*

Wu Yiyang<sup>1)</sup> Han Mingyue<sup>1)</sup> † Luo yang<sup>1)</sup> Yang mingxuan<sup>2)</sup> Li Liuhe<sup>1)</sup> †

1) (Advanced Surface Coating Technology Laboratory, School of Mechanical Engineering and Automation, Beihang University, Beijing 100191, China)

2) (Novel welding & additive manufacturing process and equipment Laboratory, School of Mechanical Engineering and Automation, Beihang University, Beijing 100191, China)

## **Abstract**

The precise regulation of deposition ion energy is a critical frontier in low-temperature plasma physics and surface modification. Bipolar pulse high-power impulse magnetron sputtering (BP-HiPIMS) has emerged as a promising technology that achieves the acceleration of high-density ion fluxes via a reversed positive pulse. However, the basic characteristics and formation process of the double layer (DL) during the positive pulse and its effects on the energy of deposition ions remain incompletely understood. This study aims to systematically investigate the spatial distribution and temporal evolution of the DL and elucidate the underlying correlations between discharge parameters and ion acceleration mechanisms. A home-built emissive probe system (APD-EP3A) and an energy-resolved mass spectrometer (Hiden PSM003) were synchronously employed to diagnose the BP-HiPIMS discharge with a Cu target. The emissive probe, operating in the saturated electron emission regime, provided a high spatial resolution of  $\sim 1$  mm and a temporal resolution of  $\sim 200$  ns to capture the transient plasma potential ( $V_p$ ) evolution from the near-target region ( $z < 25$  mm) to the bulk plasma ( $z = 25 \sim 80$  mm). Specifically, the evolutionary trajectories of the DL structure and the time-averaged ion energy distribution functions (IEDFs) were comprehensively evaluated under varying positive pulse voltages ( $U_+ = +150$  V and  $U_+ = +250$  V) and negative pulse widths ( $\tau_- = 25 \sim 200$   $\mu$ s).

The spatiotemporal potential mapping reveals that upon the onset of the positive pulse, the near-target plasma undergoes a dynamic physical reconstruction from a quasi-neutral state to a DL structure. Notably, the physical boundary between the high- and low-potential regions appears near the magnetic null point ( $z = 20 \sim 25$  mm). This spatial anchoring effect exhibits strong physical robustness governed by the cross-field transport resistance of the magnetic mirror topology. Furthermore, the structural reconstruction of the DL generates a steep local spatial potential drop of  $\sim 20$  V, serving as the primary axial acceleration source for traversing ions. Varying the discharge parameters demonstrates distinct

regulatory mechanisms on the DL and ion energy. Elevating the positive voltage ( $U_+$ ) not only directly increases the spatial potential drop of the DL boundary but also establishes a clear quantitative correspondence with the high-energy shift of the ion peak in IEDFs. Simultaneously, a higher  $U_+$  shortens the DL formation time, effectively extending the acceleration time window and thereby increasing the overall proportion of high-energy ions. Conversely, prolonging the negative pulse width ( $\tau_-$ ) intensifies the gas rarefaction effect, rendering low-ionization-energy metal atoms the dominant species upon the onset of the positive pulse. While this compositional evolution significantly accelerates the DL formation process, a longer  $\tau_-$  simultaneously allows a massive flux of unaccelerated initial ions to diffuse to the substrate. This dramatically expands the absolute base of low-energy ions, ultimately leading to a monotonic decrease in the relative proportion of high-energy ions.

This study provides direct spatial measurement evidence for the highly transient DL structure and physically elucidates the logical chain from microscopic electric field reconstruction to macroscopic ion kinetic energy gain, offering a theoretical foundation for tailoring energetic ion fluxes to deposit superior-performance advanced thin films.

**Keywords:** Bipolar pulsed HiPIMS, Plasma Potential, Double layer, Ion energy

**PACS:** 52.70.-m, 52.40.Kh, 52.80.-s, 81.15.Cd

---

\* This work was supported by the China Aero Engine Corporation (AECC) Industry-Academia-Research Collaboration Project (HFZL2023CXY014), the National Natural Science Foundation of China (NSFC 12275014, NSFC 12305278), the Natural Science Foundation of Beijing (L252098, L252037), and State Key Laboratory of High-Density Electrical Energy Conversion (DN202514).

† Corresponding author.E-mail: hanmingyue@buaa.edu.cn, liliuhe@buaa.edu.cn  
The first author.E-mail: wuyiyan@buaa.edu.cn