



高功率脉冲磁控溅射钛靶材的放电模型及等离子特性

陈畅子 马东林 李延涛 冷永祥

Discharge model and plasma characteristics of high-power pulsed magnetron sputtering titanium target

Chen Chang-Zi Ma Dong-Lin Li Yan-Tao Leng Yong-Xiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 180701 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20202050

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202050>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

筒形溅射阴极的磁场优化及其高功率放电特性研究

Magnetic field optimization and high-power discharge characteristics of cylindrical sputtering cathode

物理学报. 2021, 70(4): 045202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201540>

高功率脉冲磁控溅射技术制备掺氮类金刚石薄膜的磨蚀性能

Tribocorrosion performance of Nitrogen-doped diamond like carbon coating by high power impulse magnetron sputtering technique

物理学报. 2020, 69(10): 108101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200021>

筒内高功率脉冲磁控放电的电磁控制与优化

Electromagnetic control and optimization of high power impulse magnetron sputtering discharges in cylindrical source

物理学报. 2017, 66(9): 095203 <https://doi.org/10.7498/aps.66.095203>

低气压感性耦合等离子体源模拟研究进展

Numerical investigation of low pressure inductively coupled plasma sources: A review

物理学报. 2021, 70(9): 095206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202247>

二次电子倍增对射频平板腔建场过程的影响

Influence of multipactor discharge on field-buildup process in radio-frequency plate cavity

物理学报. 2018, 67(17): 177902 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180656>

双层螺旋环超表面复合吸波体等效电路模型及微波损耗机制

Equivalent circuit model and microwave reflection loss mechanism of double-layer spiral-ring metasurface embedded composite microwave absorber

物理学报. 2019, 68(9): 095201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181960>

高功率脉冲磁控溅射钛靶材的放电模型及等离子特性*

陈畅子¹⁾²⁾ 马东林¹⁾ 李延涛¹⁾ 冷永祥^{1)†}

1) (西南交通大学材料科学与工程学院, 材料先进技术教育部重点实验室, 成都 610031)

2) (荆楚理工学院机械工程学院, 荆门 448000)

(2020年12月3日收到; 2021年5月3日收到修改稿)

等离子密度及金属离化率是影响高功率脉冲磁控溅射沉积薄膜质量的关键因素, 高功率脉冲磁控溅射参数(如电压、脉宽、沉积气压及峰值电流等)影响着等离子密度和金属离化率. 本文利用 MATLAB/SIMULINK 建立等效电路模型, 对高功率脉冲磁控溅射钛 (Ti) 靶材的放电电流曲线进行模拟, 利用鞘层电阻计算 Ti 靶材鞘层处的等离子密度, 并采用半圆柱体-整体模型理论计算 Ti 的离化率. 研究发现: 采用由电容、电感和电阻组成的等效电路模型, 可以模拟 Ti 靶材的放电电流; 在不同高功率脉冲溅射电压、脉冲宽度和不同沉积气压下, 真空室等离子密度在 $2 \times 10^{17} - 9 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 范围内, 随着溅射电压、脉冲宽度及沉积气压的增加, 鞘层处的平均等离子密度增大; 在不同沉积气压下, Ti 的离化率值在 31%—38% 之间, 随着气压增加, Ti 的离化率增加.

关键词: 高功率脉冲磁控溅射, 等效电路, 整体模型, 离化率

PACS: 07.05.Tp, 52.27.-h, 52.30.-q, 81.15.Jj

DOI: 10.7498/aps.70.20202050

1 引言

高功率脉冲磁控溅射技术 (high power pulsed magnetron sputtering, HPPMS) 因具备高的等离子密度和靶材原子离化率, 正逐渐成为材料表面改性研究的热点^[1-3]. 通过改变高功率脉冲电压、脉冲宽度、溅射沉积气压等工艺参数, 可以调控溅射靶材的等离子体密度及金属离化率, 获得高致密度、等轴晶的薄膜^[4,5].

利用朗缪尔探针可以测试等离子密度^[6], 溅射金属离化率则主要通过等离子发射光谱法、质谱仪检测法等方法^[6-8]进行测试. 但是, 这些诊断方法存在一定的局限性, 等离子发射光谱法、朗缪尔探针等诊断仪器容易被信号干扰和污染^[9], 数据采集

易产生误差. 质谱仪相对于多栅式测量仪体积较大, 真空室内安装较为复杂^[10], 为了更简单更好地理解放电机理, 研究者提出了一种计算机模拟的方法模拟放电特性^[11]. Ken 等^[12]提出将高功率脉冲溅射放电中的鞘层等效为电容 C 和电阻 R 并联的电路, 电阻 R 可以看作是鞘层电压与正离子产生的传导电流的比值, 而传导电流与等离子密度、离子的速度相关, 从而得出 R 与等离子密度之间的方程. 根据该方程, Chen 等^[13]在 HPPMS 中提出了将放电电流波形经过快速傅里叶变换可以计算鞘层电阻 R , 进而计算了等离子密度.

HPPMS 放电电流也是离化率计算的重要参数^[14]. HPPMS 的离化率是采用 Hopwood 整体模型的模拟方法计算离化区各粒子的密度^[15-18], 进而计算离化率 (离化率 $\Theta = n_M / (n_M + n_n)$), 其中

* 表面物理与化学重点实验室项目 (批准号: 6142A02190402) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yxheng@263.net

n_M 表示溅射离子的密度, n_n 表示溅射的中性原子的密度)^[15]. 由于靶材的放电电流主要由各离子电流组成的(在阴极附近二次电子产生电流较少, 放电方向的电场 E 对霍尔电流不做功, 在此均可不予考虑)^[19-21], 通过放电电流等于离子组成的电流建立方程从而计算出离子密度, 进而计算离化率. Zheng 等^[14]在 hopwood 整体模型的基础上增加了粒子组成, 建立了半圆柱-整体模型, 根据放电电流与离子组成的电流的拟合度, 获得了不同气压下溅射 Cu 靶材的旋转频率, 结合电子温度等计算了 Cu 的离化率最高达 65%.

放电电流可以利用电容、电阻和电感组成的等效电路模型进行模拟输出^[4,11], 而放电电流波形的准确性与 HPPMS 离化区放电模型有关, Ross 等^[22]认为离化区的电子密度与电流波形上升沿的斜率正相关, 但文中离化区未指明具体的等效电路. Kirkpatrick^[11]提出高的电流峰值受离化区电容、电感和电阻组成的振荡电路的影响. 本文在 Kirkpatrick^[11]研究的基础上, 提出了一种新的电子密度随时间、靶距离变化的函数, 将原有的电容、电感和电阻组成的网络拓扑模型进行简化, 建立了新的等效电路模型. 该模型考虑了气体放电和金属离子放电模式下离化区的等效电路, 通过该模型模拟放电电流波形, 进而计算等离子密度和离化率. 由于 Ti 薄膜作为打底层被广泛用于半导体、医疗器械, 因此了解 HPPMS 溅射 Ti 靶材放电特性尤为重要. 本文以 Ti 靶溅射为例, 利用该模型仿真模拟了不同高功率脉冲溅射电压 (700, 800, 900 V)、脉冲宽度 (30, 100, 160 μ s) 及溅射沉积气压 (0.4, 1, 2.5 Pa) 下溅射 Ti 靶的放电电流, 与实际放电状态下测试的放电电流进行了对比, 并计算了等离子密度. 同时根据等效电路模拟的放电电流, 利用半圆柱-整体模型^[14]计算不同溅射气压下溅射 Ti 靶的离化率.

2 实验部分

实验中采用 HPPMS 电源 (成都 Pulsetech Electrical HPS-450D) 和非平衡磁控溅射真空系统^[23]溅射沉积 Ti 薄膜, Ti 溅射靶 (99.99%) 尺寸为 150 mm \times 125 mm, 气体为氩气 (99.999%). 放电过程中的电压和电流采用电压探针 (Tektronix, P-5100) 和电流互感器 (Pearson, 411) 进行监测,

并通过示波器 (Tektronix, TDS-220) 记录了放电电压和电流波形数据^[13]. 采用栅极离子收集器来收集饱和离子流^[24], 当栅网悬浮时, 在实验中通过增加接收极的负偏压, 检测到达接收极的离子流, 实验发现, 当接收极偏压大于 -50 V 时, 离子流变化不明显, 基板上接收到的离子流已经达到饱和. 采用等离子发射光谱法测量等离子组分^[25], 测量设备为荷兰爱万提斯公司生产的 AveSpec-2048-USB2 型光纤光谱仪, 其光栅规格配置为: 2400 条/mm, 狭缝宽度为 10 μ m, 可测试波长范围为 200—1100 nm.

3 等效电路模型建模

高功率脉冲磁控溅射产生高金属离化率, 形成了特殊的放电模式, 其放电区域由等离子体鞘层、离化区和主等离子体区域构成^[17,18]. 等效电路模型是各放电区域电路的构成, 研究表明: 在等离子放电过程中, 阴、阳极板间的电压主要降落在阻抗较大的等离子体鞘层区内, 主等离子体区域几乎没有压降, 离化区的电压值为鞘层区电压的 15%—20%^[21,26]. 考虑到等离子体鞘层区和离化区是电压降落的主要区域, 本文主要研究等离子体鞘层和离化区等效电路模型.

3.1 等离子体鞘层区等效电路模型

在 HPPMS 中, 其等离子体鞘层的等效电路模型也可以等效为电容 C 与电阻 R 的并联^[4,11,13].

根据电容的定义, 电容 C 与极板面积、真空介电常数以及极板间距有关, 表达式为^[27]

$$C = A\epsilon_0/d, \quad (1)$$

其中, C 是电容, ϵ_0 是真空介电常数, d 是鞘层宽度, A 是靶材表面积. 研究表明, HPPMS 的鞘层特性与等离子体浸没离子注入鞘层有相似之处^[28], HPPMS 鞘层宽度 d 满足蔡尔德定律^[29]:

$$d = \frac{3}{4} \sqrt{\frac{\epsilon_0^2 V_{\text{sheath}}^3}{en_i^2 k T_e}}, \quad (2)$$

其中, k 是玻尔兹曼常数, $k = 1.38 \times 10^{-23}$ J/K; T_e (K) = T_e (eV) \times 11600, $T_e = 5$ eV; V_{sheath} 是鞘层电压, $V_{\text{sheath}} = 400$ V; e 是基本电子电荷, $e = 1.6 \times 10^{-19}$ C; n_i 是离子密度; ϵ_0 是真空中介电常数, $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$ F/m. 将 (2) 式代入 (1) 式得

$$C = \frac{A\varepsilon_0}{\frac{3}{4} \sqrt[4]{\frac{\varepsilon_0^2 V_{\text{sheath}}^3}{en_i^2 kT_e}}} \quad (3)$$

HPPMS 鞘层电阻 R 与传导电流 I_{cond} 和鞘层电压 V_{sheath} 有关, 即 $R = \frac{V_{\text{sheath}}}{I_{\text{cond}}}$. 而 I_{cond} 是离子在鞘层中扩散产生的传导电流, 即 $I_{\text{cond}} = en_i u A$ [27], 其中 u 是玻姆速度, $u = \sqrt{\frac{2eV_{\text{sheath}}}{m_i}}$ [27], 最后可得到鞘层电阻 R 为 [12]

$$R = \frac{\sqrt{m_i V_{\text{sheath}}}}{en_i A \sqrt{2e}} \quad (4)$$

其中, m_i 是离子质量, $m_i = 1.66 \times 10^{-27} \times 40$ kg; A 是溅射靶表面积, 本文取 $A = 1.88 \times 10^{-2}$ m²; n_i 为等离子密度. 根据朗缪尔探针原理, 采用栅极离子收集器来收集饱和离子流, 接收极施加负偏压, 当接收极负偏压大于 -50 V 时, 离子流变化不明显, 接收极上接收到的离子流已经达到饱和, 测得饱和离子流, 通过饱和离子流计算等离子密度 [13]:

$$n_i = \frac{I_{\text{sat}}}{0.61 A_S e} \left(\frac{m_i}{kT_e} \right)^{1/2} \quad (5)$$

其中 I_{sat} 是饱和离子电流 (A); A_S 是收集离子的有效面积, 本研究中接收极面积为 1.33×10^{-2} m². 将 n_i 代入 (3) 式和 (4) 式中, 可以获得鞘层等效电路模型中电容和电阻具体的值. 为了模拟放电电流, 还需要确定离化区的等效电路模型.

3.2 离化区等效电路模型

与传统磁控溅射相比, HPPMS 放电不同之处在于其存在自溅射 [30], 这与离化区的离子返回靶材的比例有关 [17,18], 决定了放电电流曲线的波形 [19,20]. 离化区放电存在气体放电和金属离子放电, 在开始放电一段时间 t 以内以气体放电为主. 超过时间 t , 金属离子溅射靶材, 出现了金属自溅射. 这打破了原有的气体放电粒子间的平衡, 引起等离子密度分布发生变化, 变化的程度取决于金属离子溅射程度. 因此, 将离化区放电模式分为以气体放电为主和以自溅射为主的两种等效电路模式.

3.2.1 气体放电模式为主

当气体放电时, 粒子间处于一定的平衡状态, 产生的二次电子少, 不考虑磁场的影响. 鞘层与离化区界面处的电子密度和离子密度相同, 并与鞘层处的等离子密度相同, 即 $n_i = n_e = n$, n_e 为鞘层处

等离子密度. 等离子体受到外界电场驱动, 电流 i 与电场 E_x 存在如下关系 [27]:

$$i = j\omega\varepsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_{\text{pe}}^2}{\omega(\omega - jv_m)} \right] E_x \quad (6)$$

(6) 式表明电流 i 可以由等离子介电常数 ε_0 和电场 E_x 来表示, 式中 ω 为驱动频率; 中括号里面表示的是介电张量 $K_{//}$ [27], 即 $K_{//} = 1 - \frac{\omega_{\text{pe}}^2}{\omega(\omega - jv_m)}$, 其中 ω_{pe} 为电子振荡频率, ω 为驱动频率, v_m 为碰撞频率, j 为虚部. $\omega_{\text{pe}} = \sqrt{n_e e^2 / m_e \varepsilon_0}$, $v_m = 1.52 \times 10^7 P \sqrt{T_e}$, 其中 P 是压强, 单位是 Pa. 根据广义欧姆定律 [27]:

$$\sigma = j\omega\varepsilon_0 - j\varepsilon_0 \frac{\omega_{\text{pe}}^2}{\omega - jv_m} \quad (7)$$

其中 σ 为单位面积等效电阻的倒数, 即单元体等效阻抗 Z 的表达式为

$$\begin{aligned} \frac{1}{Z} &= \sigma A = \left(j\omega\varepsilon_0 - j\varepsilon_0 \frac{\omega_{\text{pe}}^2}{\omega - jv_m} \right) A \\ &= j\omega\varepsilon_0 A + \frac{1}{j\omega \frac{1}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0} + \frac{v_m}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0}} \end{aligned} \quad (8)$$

(8) 式为离化区单元体等效电路阻抗的表达式, 根据阻抗 Z 的表达式可以看出, 单元体电路可以等效为电感 L 与电阻 R_1 的串联, 再与电容 C_1 并联, 其中 $L = \frac{1}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0}$, $R_1 = \frac{v_m}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0}$.

离化区等效电路总阻抗 Z_T 可以看作是单元体的阻抗 Z 在离化区域的积分, 离化区的厚度为 z_1 , 由于本研究中高功率脉冲磁控溅射电压频率 ω 远小于等离子振荡频率 (10^{10} Hz 左右), 电容 C_1 可以忽略不计 [27]. 单元体可以等效为电感 L 与电阻 R_1 的串联, 将单元体在 $0-z_1$ 范围内进行积分, 可以求得总的电感值 L_T 和总的电阻值 R_T , 即 $L_T = \frac{Z_1}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0}$, $R_T = \frac{Z_1 v_m}{A\omega_{\text{pe}}^2 \varepsilon_0}$.

3.2.2 金属自溅射放电模式为主

当离化区以金属自溅射为主, 特殊的离化机制使得离化区产生了大量的二次电子, 二次电子会影响放电电流曲线波形 [14], 等离子密度 n_e 的分布也发生了变化, 因此离化区的等效电路模型会发生变化. 考虑电场和磁场的影响, 将离化区看作磁化等离子体 [27], 考虑 $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ 矢量与磁场垂直分量 B_{\perp}

的方向不同^[31], 如图 1 所示, 等离子介电张量 \mathbf{K} 会出现两种表现形式^[27], $\mathbf{K} = k_{\perp} \pm k_{\times}$, 其中 k_{\perp} 是垂直介电张量, k_{\times} 是差乘介电张量^[27], 计算公式分别为

$$k_{\perp} = 1 - \frac{\omega - j\nu_m}{\omega} \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega - j\nu_m)^2 - \omega_{ce}^2}, \quad (9)$$

$$k_{\times} = \frac{\omega_{ce}}{\omega} \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega - j\nu_m)^2 - \omega_{ce}^2}. \quad (10)$$

图 1 中根据磁力线 B 垂直分量方向 B_{\perp} 的不同, 将离化区分为 I 区和 II 区, 考虑 ω_{ce} (电子在磁场中的旋转频率), 分别建立 I 区和 II 区的单元体电流^[32]:

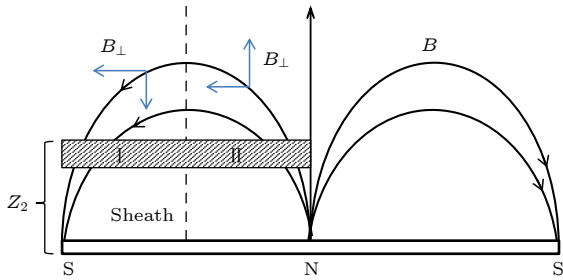


图 1 HPPMS 放电离化区示意图^[31]

Fig. 1. Schematic diagram of HPPMS discharge ionization region^[31].

$$i_I = j\omega\varepsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - \omega_{ce} - j\nu_m)} \right] E_m e^{j\omega t}, \quad (11)$$

$$i_{II} = j\omega\varepsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + \omega_{ce} - j\nu_m)} \right] E_m e^{j\omega t}, \quad (12)$$

式中, i_I , i_{II} 是 I 区和 II 区的单元体电流. 根据广义欧姆定律, 可以获得 I 区和 II 区的单元体阻抗表达式^[27]:

$$\frac{1}{Z_I} = j\omega\varepsilon_0 A_I + \frac{1}{j\omega \frac{\omega - \omega_{ce}}{A_I \omega \omega_{pe}^2 \varepsilon_0} + \frac{\nu_m}{A_I \omega_{pe}^2 \varepsilon_0}}, \quad (13)$$

$$\frac{1}{Z_{II}} = j\omega\varepsilon_0 A_{II} + \frac{1}{j\omega \frac{\omega + \omega_{ce}}{A_{II} \omega \omega_{pe}^2 \varepsilon_0} + \frac{\nu_m}{A_{II} \omega_{pe}^2 \varepsilon_0}}, \quad (14)$$

其中 Z_I , Z_{II} 为 I 区和 II 区的单元体阻抗, A_I , A_{II} 为 I 区和 II 区表面积. 从 (13) 式和 (14) 式可以看出, I 区和 II 区的单元体阻抗可以由电感 L_1 和电阻 R_2 的串联再与电容 C_2 并联, 总阻抗可以看成是一系列单元体的组合. 将单元体阻抗从 s (s 是鞘层厚度) 到 z_2 (z_2 是离化区的厚度) 进行积分就可以得到 I 区总阻抗 R_I , II 区总阻抗 R_{II} 同理可以获得, 计算公式分别为

$$\text{I 区: } R_I = \int_s^{z_2} \frac{j(\omega_I - \omega_{ce}) + \nu_m}{A_I \left[\frac{n_e(x)e^2}{m} - \omega_I(\omega_I - \omega_{ce})\varepsilon_0 + j\omega_I\nu_m\varepsilon_0 \right]} dx, \quad (15)$$

$$\text{II 区: } R_{II} = \int_s^{z_2} \frac{j(\omega_{II} + \omega_{ce}) + \nu_m}{A_{II} \left[\frac{n_e(x)e^2}{m} - \omega_{II}(\omega_{II} + \omega_{ce})\varepsilon_0 + j\omega_{II}\nu_m\varepsilon_0 \right]} dx, \quad (16)$$

其中 ω_I , ω_{II} 是共振频率^[27], $\omega_I = \frac{\omega_{ce} + \sqrt{\omega_{ce}^2 + 4\omega_{pe}^2}}{2}$, $\omega_{II} = \frac{-\omega_{ce} + \sqrt{\omega_{ce}^2 + 4\omega_{pe}^2}}{2}$; $\omega_{ce} = \frac{eB_{\perp}}{m_e}$, B_{\perp} 为磁场垂直分量, 实验室测得平均磁场强度为 100 mT, 计算可得 $\omega_{ce} = 1.41 \times 10^{10}$ Hz; $n_e(x)$ 为离化区等离子密度随靶基距的变化函数. 实验中以溅射电压 800 V、脉冲宽度 100 μ s、高功率脉冲磁控溅射 Ti 靶为研究对象, 通过改变溅射靶材和接收极之间的距离, 分别测量接收极在不同位置处的饱和离子流, 根据 (5) 式计算距离溅射靶材不同位置处的等离子体密度, 做出等离子体密度 n_e 随距离的变化

曲线, 对该曲线进行 Boltzmann 函数拟合^[33], 得到的函数

$$n_e(x) = 1.8 \times 10^{18} + \frac{4 \times 10^{20}}{1 + 4 \exp[(x + 0.05)/0.1]}, \quad (17)$$

拟合度 Adj. R^2 为 0.9958, 如图 2 所示.

通过积分计算得到 I 区和 II 区的阻抗值, 进而得到等效电路, 以 I 区为研究对象: $R_I = 1.67618 \times 10^{-6} + 0.00286058j$, 从 R_I 的表达式可以看出, 等效电路是由电感 L_1 和电阻 r_1 串联而成的. 需要指出: I 区和 II 区的等效模型都是电感和电阻的串联, 仅元器件的数值不同.

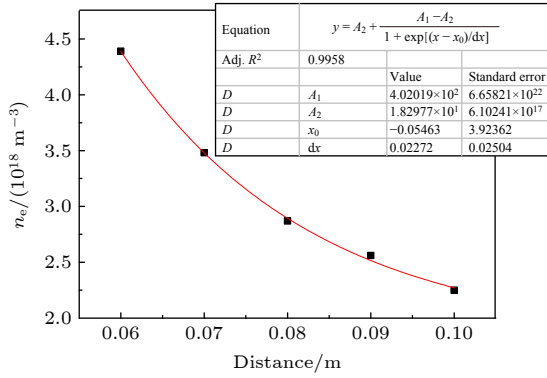


图2 离化区等离子体密度随垂直靶材方向距离的变化曲线
Fig. 2. Variation curve of plasma density in ionization region with distance perpendicular to target direction.

Ku 等^[32]认为, 离化区与鞘层区连接处存在一定的电压 U_{pp} , 可以由一定的电容 C_p 连接, 电容值与离化区的电势相关, 表达式为

$$C_p = en_e A_T z_2 U_{pp}, \quad (18)$$

其中 z_2 是电离区厚度^[18], $U_{pp} = 0.5 - 2 \text{ V}$ ^[32]. 可以看出, 以金属自溅射放电为主的电路模型可以等效为电容 C_p 、I 区和 II 区的总电感 L_p 及总电阻 R_p 串联.

3.3 HPPMS 鞘层和离化区等效电路模型

在 3.1 节和 3.2 节的基础上, 建立了 HPPMS 放电的等效电路模型, 如图 3 所示, 虚线 T (靶材) 左边是高功率脉冲磁控溅射电源的电路图^[23], $R_0 = 3 \Omega$, $R_k = 3000 \Omega$, 右边为等离子放电的等效电模型, Sheath 为鞘层区, Ionization region 为离化区, t_1 为发生自溅射的时间, 当时间 $\tau < t_1$, 连通开关 S1, 等效电路为电感与电阻串联. 当时间 $\tau > t_1$, 连通开关 S2, 等效电路由电容、电阻和电感串联.

图 4 是不同脉宽 (30, 100, 160 μs) 下 Ti 靶材

放电电流仿真曲线和实际测量电流曲线. 不同脉宽下 HPPMS 放电会产生以气体溅射和金属自溅射为主的两种溅射模式, 金属自溅射为主时会产生 Ti 的高能离子^[6], 因此较高的功率密度下会产生自溅射替代气体离子放电. 在其他溅射参数不变时, Horwat 和 Anders 提出脉宽为 100 μs 可能是金属自溅射替代气体离子放电的临界时间^[34], 本文假设 160 μs 时功率密度更大, 以自溅射为主, 等效电路模型先闭合 S1, 再闭合 S2, 最后断开 S1, 如图 3 所示, 离化区由电容、电感、电容串联. 当脉宽为 30 和 100 μs 时, Ti 靶材的放电以气体放电为主, 等效电路模型连通开关 S1, 离化区为电感与电阻的串联. 对于脉冲放电, 脉冲宽度 T_{on} 是影响等离子特性的关键^[24], 将图 4 中上升沿和峰值电流进行放大, 计算拟合度, 发现拟合度 R^2 在 80% 以上, 如图 4(a) — (c) 所示, 30 μs 拟合度为 99%, 100 μs 拟合度为 89%, 160 μs 拟合度为 82%, 这说明模拟电流曲线在上升沿和峰值电流上和实际测量值的拟合度很高. 拟合度 R^2 采用剩余平方和计算^[35], R^2 的值越接近 1, 拟合度越高.

图 5 是不同电压 (700, 800, 900 V) 下 Ti 靶材放电电流仿真曲线和实际测量电流曲线, 脉宽为 200 μs . 放电电压 700 和 800 V 溅射 Ti 靶时, 放电以气体放电为主, 等效电路模型连通开关 S1, 离化区为电感与电阻的串联. 电压为 900 V 时能量较高, 放电以金属离子自溅射为主, 等效电路模型连通开关 S2, 离化区由电容、电感、电容串联. 将图 5 中 T_{on} 上升沿和峰值电流进行放大, 计算拟合度, 发现拟合度 R^2 在 88% 以上, 如图 5(a) — (c) 所示, 700 V 拟合度为 88%, 800 V 拟合度为 92%, 900 V 拟合度为 95%, 这说明模拟电流曲线和实际测量值的拟合度很高.

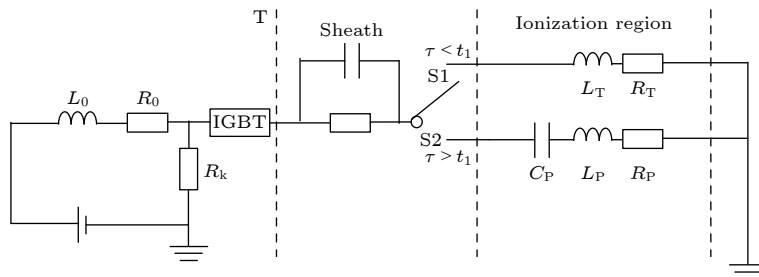


图3 HPPMS 电源^[23]和放电区域的等效电路模型

Fig. 3. Equivalent circuit model of HPPMS^[23] power supply and discharge region.

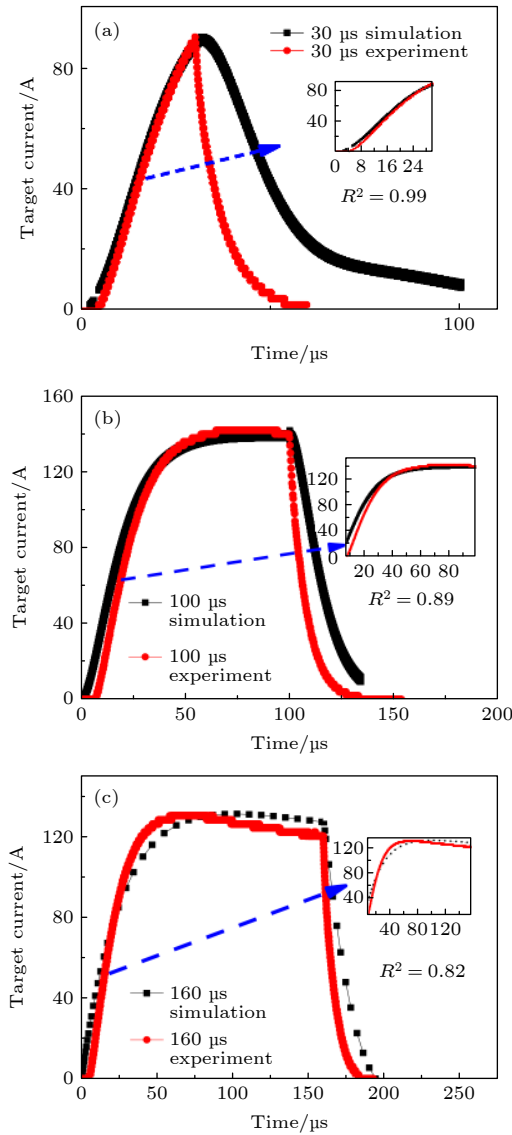


图 4 不同脉宽下放电电流仿真曲线和实际测量溅射电流曲线 (a) 30 μs ; (b) 100 μs ; (c) 160 μs
 Fig. 4. Simulation curve and actual measurement curve of discharge current under different pulse width: (a) 30 μs ; (b) 100 μs ; (c) 160 μs .

图 6 是在不同气压 (0.4, 1, 2.5 Pa) 下的 Ti 靶材放电电流仿真曲线和实际测量曲线. 从图 6(a) 可以看出, 当气压为 0.4 Pa 溅射 Ti 靶时, 靶电流较为平坦, 这可能是气体和金属放电交替变化, 最终达到一定比例的平衡, 等效电路模型闭合开关 S2, 再闭合 S1, 再断开 S2. 从图 6(b) 和图 6(c) 可以看出, 当气压为 1 和 2.5 Pa 时, 随着气压的增加, 到 2.5 Pa 时, 增加了系统中气体比例, 减慢了金属对气体的取代过程, 导致电流峰值增加 [36], 而放电后期, 平台有一定的下降, 这可能是随着气体和金属

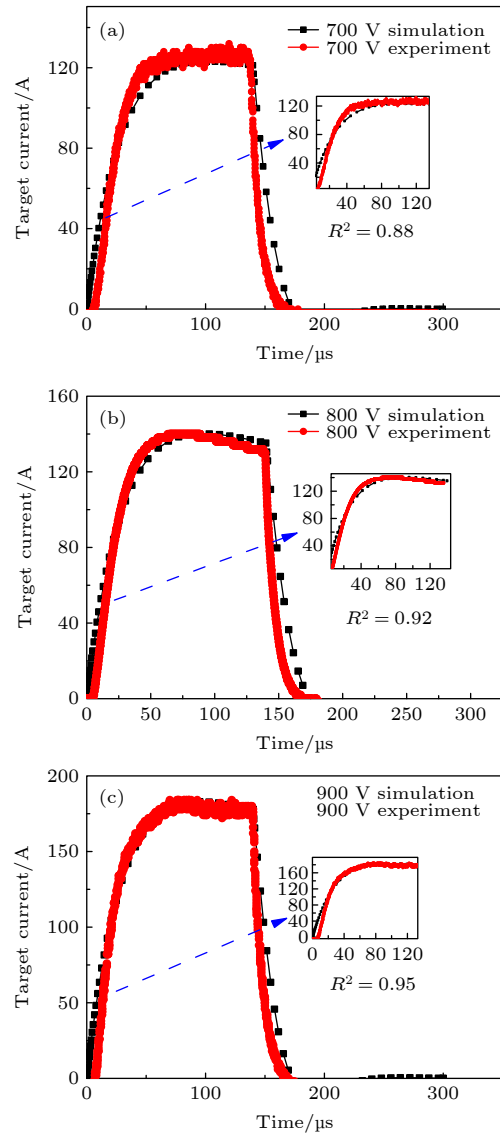


图 5 不同 HPPMS 溅射电压下放电电流仿真曲线和实际测量溅射电流曲线 (a) 700 V; (b) 800 V; (c) 900 V
 Fig. 5. Simulation curve and actual measurement curve of discharge current under different HPPMS sputtering voltage: (a) 700 V; (b) 800 V; (c) 900 V.

放电交替变化, 金属离子逐渐取代气体离子放电. 等效电路模型闭合开关 S1, 再闭合 S2, 再断开 S1, 离化区由电容、电感、电容串联. 可以看到, 当气压为 0.4 Pa 时, 实际测量的电流曲线相对于模拟的电流曲线出现了一定的滞后, 这可能与靶电流延迟问题有关 [37]. 由于等效电路模型未考虑电流的滞后问题, 计算拟合度仅计算主要脉宽部分, $R^2 = 0.88$, 如图 6(a) 所示. 当气压为 1 和 2.5 Pa 时, 拟合度 R^2 分别是 0.81 和 0.9, 这说明采用等效电路模型可以较为准确地模拟 HPPMS 放电电流曲线.

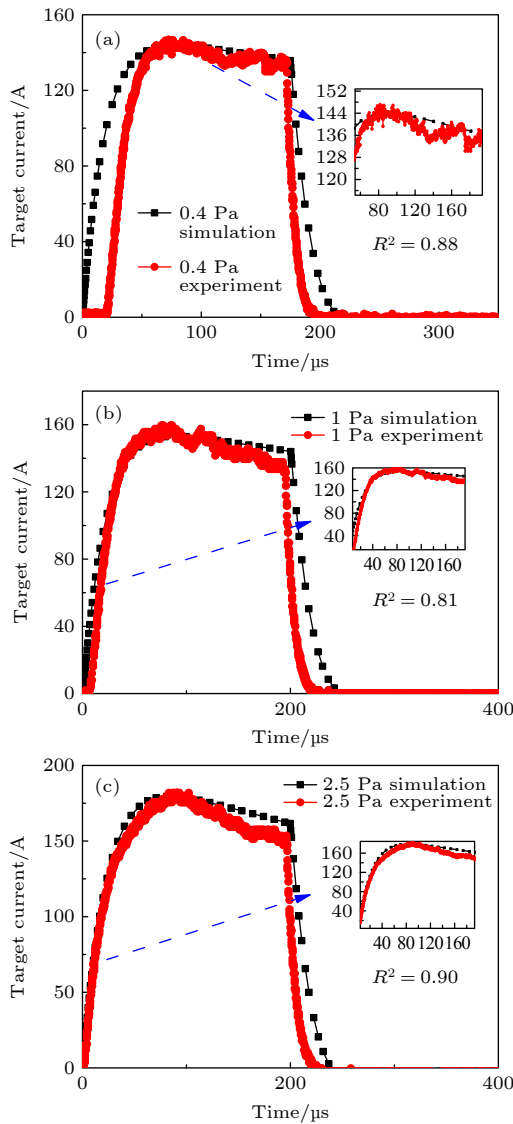


图6 不同HPPMS沉积气压下放电电流仿真曲线和实际测量溅射电流曲线 (a) 0.4 Pa; (b) 1 Pa; (c) 2.5 Pa
 Fig. 6. Simulation curve and actual measurement curve of discharge current under different deposition pressure: (a) 0.4 Pa; (b) 1 Pa; (c) 2.5 Pa.

利用等效电路模型中的鞘层电阻可以估算HPPMS等离子密度^[13], 将已测得的电压电流曲线视作周期性非正弦信号进行快速傅里叶转换, 电压与电流的直流分量比值即为鞘层电阻 $R^{[13]}$, 见(4)式, 等离子密度结果如图7所示.

图7是利用等离子电路模型在不同放电电压(700, 800, 900 V)、脉宽(30, 100, 160 μs)和靶电流(113, 150, 185 A)下模拟计算的等离子密度. 结果表明, 等效电路模型计算的等离子密度在 10^{17} — 10^{18} m^{-3} , 与文献报道HPPMS的等离子密度^[6,37]是相同的, 这说明利用等效电路模型计算等离子密度是可行的.

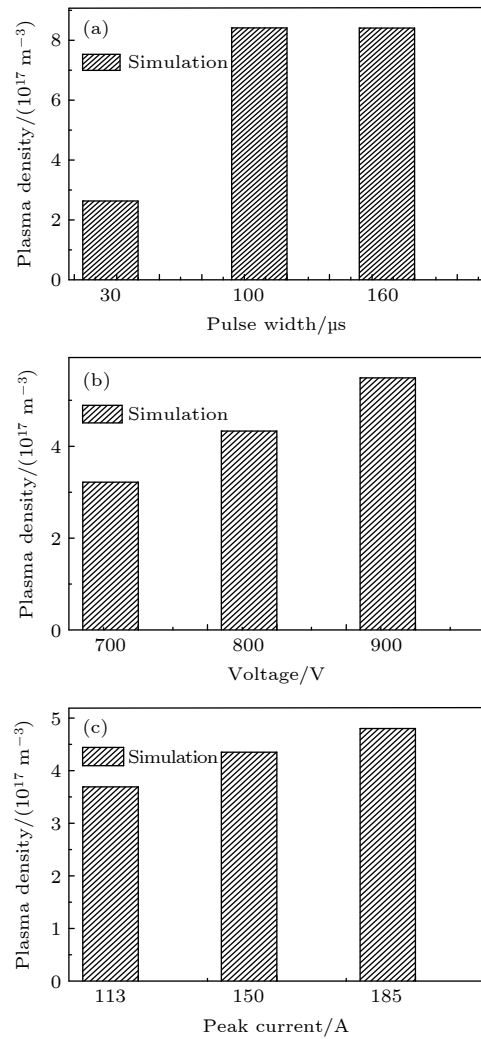


图7 不同高功率脉冲磁控溅射工艺参数下的等离子密度 (a) 不同脉宽 30, 100, 160 μs ; (b) 不同电压 700, 800, 900 V; (c) 不同靶电流 113, 150, 185 A

Fig. 7. Comparison of plasma density calculated by equivalent circuit (simulation) under different HPPMS process parameters: (a) Different pulse width (30, 100, 160 μs); (b) different sputtering voltages (700, 800, 900 V); (c) different target currents (113, 150, 185 A).

本文利用半圆柱体-整体模型方法^[14]和 Gudmundsson^[15]提出的离化机理建立各粒子平衡方程和能量守恒方程等微分方程组, 求解各粒子密度, 进而计算离化率, 而等效电路模型模拟的放电电流是计算各离子密度的关键因素^[17,18], 模拟的峰值电流可以验证放电区域各离子密度的正确性, 继而可以验证离化率的正确性. 图8为HPPMS靶材及离化区几何模型, 模型各参数取值为圆柱体长100 mm, 半径74 mm. 实验中测得平均电子温度 $T_e = 5 \text{ eV}$.

离化区粒子群中主要有 Ar 原子和金属原子, 热原子 Ar^H 、亚稳态 Ar^m , 离子有 Ar^+ 、金属离子,

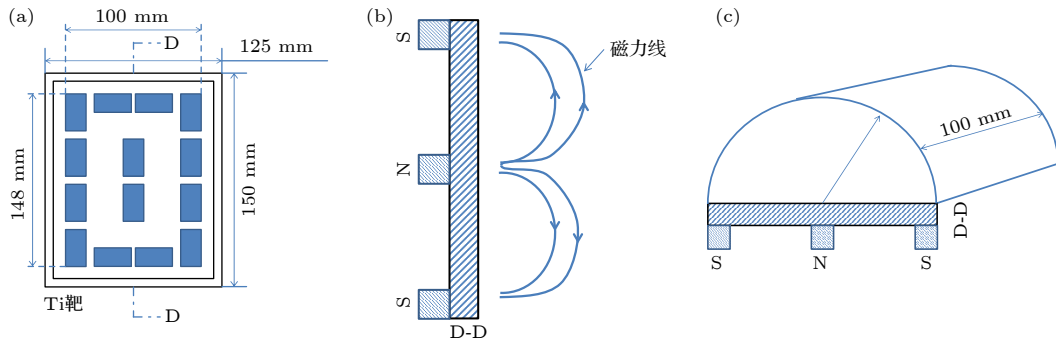


图 8 HPPMS 靶材及离化区几何模型 (a) Ti 靶尺寸及磁铁布置; (b) Ti 靶剖面图 D-D; (c) 离化区半圆柱体几何模型
Fig. 8. Geometric model of HPPMS target and ionization region: (a) Ti target size and magnet arrangement; (b) Ti target profile; (c) geometric model of semi cylinder in ionization region.

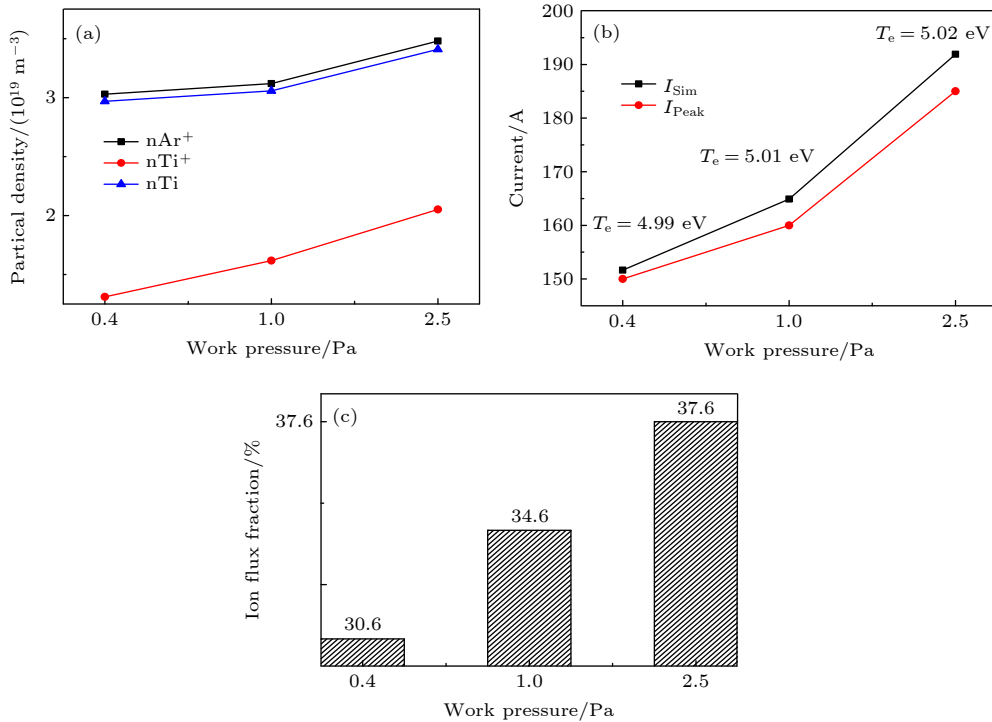


图 9 不同气压下计算的 (a) 粒子密度、(b) 峰值电流及电子温度、(c) 离化率

Fig. 9. (a) Particle density, (b) peak current and electron temperature and (c) ion flux fraction calculated by the global model under different pressures.

电子主要有 e 和热电子 e^H (由于二次电子散射产生)^[22]. 金属离子的价态取决于 HPPMS 工艺产生的能量, 在对 Ti 靶溅射时, 文献报道产生 Ti^+ , Ti^{2+} 和 Ti^{4+} ^[38], 但一般以 Ti^+ 为主, 大概可以占到 90%^[38,39]. 从实验室 Ti 的光谱图^[39] 可看出, 本文涉及的工艺, 产生的均为 Ti^+ 为主. 根据整体模型, 以不同气压为例, 计算的离化率结果如图 9 所示.

图 9 是不同气压 (0.4, 1 和 2.5 Pa) 下利用整体模型模拟计算的粒子密度、峰值电流及电子温度、离化率. 根据图 6, 仿真出的峰值电流 I_{Peak} 分别是 143, 156 和 182 A. 将 I_{Peak} 进行条件限制, 通

过对 $T_e = 5$ eV 不断的试错, 利用 matlab 编程求解数值解, 从而获得各粒子密度, 如图 9(a) 所示. 图 9(b) 是不同气压下利用整体模型计算出的电子温度 T_e 和峰值电流 I_{Sim} , 可以看出, 电子温度分别为 4.99, 5.01 和 5.02 eV, 电子温度非常接近 5 eV. 不同气压下通过各离子密度计算的峰值电流 I_{Sim} 与实际峰值电流 I_{Peak} 的差值较小, 这说明利用整体模型计算离化区各粒子密度是准确的. 通过各粒子密度计算的离化率如图 9(c) 所示, 可以看出, 离化区的金属离化率有不同程度的增加, 最高可以达到 37.6%.

4 结 论

本文依据等离子体动力学理论建立了 HPPMS 放电的等效电路模型, 利用等效电路模型预测靶材放电电流并计算等离子体密度, 同时利用整体模型理论计算金属离子化率, 结果表明:

1) 经过电容、电阻、电感串并联的等效电路模型能够较为准确地模拟放电电流。

2) 采用等效电路模型, 通过对放电电流和放电电压曲线的转变, 计算出鞘层电阻, 进而获得等离子体密度. 计算的等离子体密度在 2×10^{17} — $9 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$, 利用等效电路诊断等离子体密度的方法可行。

3) 采用半圆柱体-整体模型理论, 通过建立粒子平衡方程、能量守恒方程和峰值电流方程, 计算了各粒子密度, 进而计算了 Ti 的离子化率. 不同气压下, 等离子体离子化率在 31%—38% 之间, 峰值电流越大, 离子化率越高, 通过整体模型计算 Ti 的离子化率的方法可行。

感谢密歇根州立大学郑博聪博士、荆楚理工学院刘进博士对本文相关计算的指导和建议。

参考文献

- [1] Cui S H, Wu Z Z, Xiao S, Chen L, Li T J, Liu L L, Fu R K Y, Tian X B, Chu P K, Tan W C 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 195204 (in Chinese) [崔岁寒, 吴忠振, 肖舒, 陈磊, 李体军, 刘亮亮, 傅劲裕, 田修波, 朱剑豪, 谭文长 2019 *物理学报* **68** 195204]
- [2] Bobzin K, Brgelmann T, Kruppe N C, Carlet M 2020 *Surf. Coat. Technol.* **385** 125370
- [3] Jing P P, Ma D L, Gong Y L, Luo X Y, Leng Y X 2020 *Surf. Coat. Technol.* **405** 126542
- [4] Alami J, Sarakinos K, Uslu F, Wuttig M 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 015304
- [5] Wang Y, Chen C Z, Wu Y P, Leng Y X 2017 *Surface Technology* **46** 15 (in Chinese) [王愉, 陈畅子, 吴艳萍, 冷永祥 2017 *表面技术* **46** 15]
- [6] Bohlmark J, Lattemann M, Gudmundsson J T, Ehasarian A P, Helmersson U 2006 *Thin Solid Films* **515** 1522
- [7] Konstantinidis S, Dauchot J P, Ganciu M, Ricard A, Hecq M 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 013307
- [8] Yu H, Sporre J R, Liang M, McLain J T, Ruzic D N, Szott M M, Raman P 2015 *J. Vac. Sci. Technol. A* **33** 031301
- [9] Bohlmark J, Helmersson U, Van Zeeland M, Axnis I, Alami J, Brenning N 2004 *Plasma Sources Sci. Technol.* **13** 654
- [10] Gahan D, Dolinaj B, Hopkins M 2008 *Rev. Sci. Instrum.* **79** 3455
- [11] Kirkpatrick S 2009 *Ph. D. Dissertations* (Nebraska: University of Nebraska)
- [12] Ken Y, Ryosuke M, Kingo A, Hiroshi T, Tadao O 2009 *Nuclear Inst & Methods in Physics Research B* **267** 1692
- [13] Chen C Z, Ma D L, Huang N, Leng Y X 2019 *Int. J. Mod. Phys. B* **33** 290
- [14] Zheng B C, Meng D, Che H L, Lei M K 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 290
- [15] Gudmundsson J T 2008 *J. Phys. Conf. Ser.* **100** 082013
- [16] Hopwood J 1998 *Phys. Plasmas* **5** 1624
- [17] Kozak T, Pajdarova A D 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 1661
- [18] Minea T M, Costin C, Revel A, Lundin D, Caillault L 2014 *Surf. Coat. Technol.* **255** 52
- [19] Wu Z Z, Xiao S, Ma Z Y, Cui S H, Ji S P, Tian X B, Fu Ricky K Y, Chu P K, Pan F 2015 *AIP Adv.* **5** 097178
- [20] Wu Z Z, Xiao S, Ma Z Y, Cui S H, Pan F, Tian X B, Fu R K Y, Chu P K 2016 *Surf. Coat. Technol.* **306** 319
- [21] Liang M, Yu H, Szott M M, McLain J T, Ruzic D N 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 290
- [22] Ross A E, Ganesan R, Bilek M M M, McKenzie D R 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* **24** 025018
- [23] Jing F J, Yin T L, K Yukimura, Sun H, Leng Y X, Huang N 2012 *Vacuum* **86** 2114
- [24] Wu B H, Wu J, Jiang F, Ma D L, Chen C Z, Sun H, Leng Y X, Huang N 2017 *Vacuum* **135** 93
- [25] Ma D L, Wu B H, Deng Q Y, Leng Y X, Huang N 2019 *Vacuum* **160** 226
- [26] Raman P, Shchelkanov I, McLain J, Cheng M, Ruzic D, Haehnlein I, Jurczyk B, Stubbers R, Armstrong S 2016 *Surf. Coat. Technol.* **293** 10
- [27] Lieberman M A, Lichtenberg A J (translated by Pu Y K) 2007 *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (Beijing: Science Press) p293 (in Chinese) [迈克尔 A 力伯曼, 阿伦 J 里登伯格 著 (蒲以康等译) 2007 等离子体放电原理与材料处理 (北京: 科学出版社) 第293页]
- [28] André A 2010 *Surf. Coat. Technol.* **204** 2864
- [29] André A, Joakim A, David H, Arutiu E 2011 *Surf. Coat. Technol.* **205** S1
- [30] André A, Joakim A, Arutiu E 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 113303
- [31] Brenning N, Axnas I, Raadu M A, Lundin D, Helmersson U 2008 *Plasma Sources Sci. Technol.* **17** 045009
- [32] Ku V P T, Annaratone B M, Allen J E 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 6536
- [33] Bohlmark J, Alami J, Christou C 2005 *J. Vac. Sci. Technol. A* **23** 18
- [34] Horwat D, Anders A 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 135210
- [35] Lin H 2014 *M. S. Thesis* (Xi'an: Xidian University) (in Chinese) [林浩 2014 硕士学位论文 (西安: 西安电子科技大学)]
- [36] Wu Z Z, Tian X B, Li C W, Fu R K Y, Pan F, Chu P K 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 175201 (in Chinese) [吴忠振, 田修波, 李春伟, 傅劲裕, 潘锋, 朱剑豪 2014 *物理学报* **63** 175201]
- [37] Yushkov G Y, Anders A 2010 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **38** 3028
- [38] Ehasarian A P, Vetushka A, Hecimovic A 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 267
- [39] Wu B H, Leng Y X, Huang N, Yang W M, Li X Y 2018 *Surf. Coat. Technol.* **47** 245 (in Chinese) [吴保华, 冷永祥, 黄楠, 杨文茂, 李雪源 2018 *表面技术* **47** 245]

Discharge model and plasma characteristics of high-power pulsed magnetron sputtering titanium target*

Chen Chang-Zi¹⁾²⁾ Ma Dong-Lin¹⁾ Li Yan-Tao¹⁾ Leng Yong-Xiang^{1)†}

1) (*Key Laboratory of Advanced Technologies of Materials, Ministry of Education, School of Material Science and Engineering, Southwest Jiaotong University, Chengdu 610031, China*)

2) (*School of Mechanical Engineering, Jingchu University of Technology, Jingmen 448000, China*)

(Received 3 December 2020; revised manuscript received 3 May 2021)

Abstract

High-power pulsed magnetron sputtering has become a popular research tool in surface technology industry because it can prepare the films with excellent surface quality. The plasma density and metal ionization rate are the key factors affecting the quality of the film deposited by high-power pulsed magnetron sputtering. The parameters of high-power pulsed magnetron sputtering (such as applied voltage, pulse width, deposition pressure and peak current) affect the plasma density and metal ionization rate. In this paper, in order to more easily understand the plasma densities and metal ionization rates at the different process parameters, the plasma densities and ionization rates are calculated numerically. An equivalent circuit model established by MATLAB/Simulink software is used to obtain the discharge current curve of high-power pulsed magnetron sputtering titanium (Ti) target. The plasma density near the plasma sheath is calculated by the sheath resistance in the equivalent circuit model. The ionization rate of Ti is calculated by using the semi-cylinder global model theory combined with the discharge current simulated by equivalent circuit model. It is found that under the different high power pulse sputtering voltages, pulse widths and different deposition pressures, the discharge modes are of gas discharge and metal ion discharge, and the gas discharge interacts with metal ion discharge. The equivalent circuit model is produced by the main discharge mode, and the equivalent circuit model composed of capacitor, inductor and resistors in series and in parallel can be used to simulate the discharge current of Ti target. The result shows that the simulated discharge current is accurate in the rising edge and peak value in comparison with experimental data. The value of electron component in the model is related to the saturation ion current.

According to the sheath resistance in the model, the average plasma density in the vacuum chamber increases with increasing sputtering voltage, pulse width and deposition pressure. And the plasma density in the vacuum chamber lies in a range of $(2-9) \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$. The particle equilibrium equation is established by using the semi-cylinder global model theory. The electron temperature (5 eV) and discharge current are used as boundary conditions to calculate the ionization rate of Ti. The value of the ionization rate of Ti is in a range of 31%–38% at different deposition pressures, and the ionization rate of Ti increases with the increase of deposition pressure.

Keywords: high power pulsed magnetron sputtering, equivalent circuit, global model, ionization rate

PACS: 07.05.Tp, 52.27.-h, 52.30.-q, 81.15.Jj

DOI: 10.7498/aps.70.20202050

* Project supported by the Fund of Science and Technology on Surface Physics and Chemistry Laboratory, China (Grant No. 6142A02190402).

† Corresponding author. E-mail: yxleng@263.net