

电流密度对电沉积铜膜剩余电阻率的影响^{*}

张 帅^{1,2} 罗积润^{1,2} 王小霞¹ 张 瑞¹ 吴质洁¹ 冯海蛟³

(1. 中国科学院空天信息创新研究院微波器件与系统研究发展中心 北京 100094;

2. 中国科学院大学电子电气与通信工程学院 北京 100049;

3. 中核环保有限公司 北京 100016)

摘要: 为了获得 1.3 GHz 功率耦合器的镀铜膜,研究不同电流密度和沉积时间对镀铜膜剩余电阻率(*RRR*)的影响。电流密度分别为 1、1.5 和 2 A/dm²,沉积时间为 1~6 h,讨论了铜膜 *RRR* 值、微观形貌、表面粗糙度和织构随镀层厚度的变化。结果表明,随着电流密度减小和沉积时间延长,表面粗糙度变大,铜膜 *RRR* 值增大。在电流密度为 1 和 1.5 A/dm² 下沉积的铜膜,随着沉积时间的增加,晶胞结节变大,(111)晶面的织构系数增加,铜膜 *RRR* 值变大。在电流密度为 2 A/dm² 下沉积的铜膜中含有孔洞缺陷,导致铜膜的 *RRR* 值显著下降。硬 X 射线自由电子激光装置的 1.3 GHz 功率耦合器的铜膜采用电流密度为 1 A/dm²,沉积时间为 4 h 的镀铜工艺,其铜膜 *RRR* 值、铜膜与基体结合力、高低温适应性以及微波功率均满足实际工程应用。

关键词: 电镀铜膜; 电流密度; 微观形貌; 织构; 剩余电阻率

中图分类号: TG153; TN12

Effects of Current Density on Residual Resistivity Ratio of Electrodeposited Copper Films

ZHANG Shuai^{1,2} LUO Jirun^{1,2} WANG Xiaoxia¹ ZHANG Rui¹ WU Zhijie¹ FENG Haijiao³

(1. Research and Development Center for Microwave Devices and Systems,

Aerospace Information Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, China;

2. School of Electronic, Electrical and Communication Engineering,

University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. CNNC Environment Protection Co., Ltd, Beijing 100016, China)

Abstract: In order to obtain copper coating of 1.3 GHz power coupler, the effects of current density and deposition time on the residual resistivity ratio (*RRR*) of copper coating were investigated. Copper films were electrodeposited with current densities of 1, 1.5 and 2 A/dm², respectively, and deposition times varied from 1 to 6 h. The changes of the *RRR* value, microstructure, surface roughness and texture of copper films with coating thickness were discussed. The results show that the *RRR* value of copper films and the surface roughness increase with the decrease of current density and the increase of deposition time. Moreover, an increasing of the texture coefficient of (111) crystal plane and larger nodule of copper films tend to increase the *RRR* value of copper films, which electrodeposited at the current densities of 1 and 1.5 A/dm². The *RRR* value of the copper films deposited at the current density of 2 A/dm² decreases significantly due to the existence of holes defects of the copper films. The copper plating process with current density of 1 A/dm² and deposition of 4 h was applied to the 1.3 GHz power coupler of hard X-ray free electron laser device. The *RRR* value of copper films, the adhesion between copper film and substrate, high and low temperature adaptability and microwave power meet the engineering application.

Keywords: electrodeposited copper film; current density; surface morphology; texture; residual resistivity ratio

^{*} 国家自然科学基金资助项目(61771454)。

Fund: Supported by National Natural Science Foundation of China(61771454).

20210201 收到初稿,20210715 收到修改稿

0 前言

功率耦合器是各类粒子加速器中高频系统的重要组成部分,它的主要功能是作为功率源和超导腔的桥梁,承担着馈送功率、真空隔离以及温度过渡等作用^[1],其性能的好坏直接影响大科学工程装置能否持续有效的稳定运行^[2]。功率耦合器将射频功率从室温传输到低温下的超导腔内,需要同时具有热隔离性和导电性,在功率耦合器不锈钢表面上镀铜膜可以满足这些要求^[3-4]。电化学沉积铜技术可以应用于制造此类功率耦合器,这种技术与微电子中使用的其他真空镀膜技术不同,操作相对简单,价格低廉,是大规模生产的理想选择。铜膜的剩余电阻率(RRR)是影响功率耦合器的微波能量和热性能的一个重要参数^[5]。BENVENUTI 等^[6]采用电化学沉积镀铜膜获得的剩余电阻率为 90,该电化学沉积铜膜工艺已应用于 LEP2 超导射频腔的耦合器上。FOUAIDY 等^[7]采用理论计算和试验测试不锈钢样品上镀铜膜的 RRR 值,测试的 RRR 值在 20~46 范围内,经过 400 °C 退火处理 1 h 后,铜膜的 RRR 值大约可以增加 6 倍。

电化学沉积的铜膜性能通常取决于电解液组成^[8]、电流密度^[9]、溶液的 pH 值^[10]和其他一些相关因素^[11]。这些工艺条件对铜膜的织构变化有很大的影响^[12],而铜膜晶粒的择优取向影响铜膜的物理、化学和力学性能。文中通过铜膜的微观形貌、表面粗糙度和晶粒的择优取向解释不同电流密度和沉积时间对铜膜 RRR 值的影响,为功率耦合器选择合适的镀铜工艺参数提供依据。

1 试验

1.1 试验材料和方法

试验样品为 316 L 不锈钢,尺寸为 100 mm × 5 mm × 1 mm。对样品依次在去油剂和丙酮中超声波脱脂去油,之后在 200~400 ml/L HF、150~300 ml/L HNO₃ 和 1~2 ml/L HCl 的混合液中侵蚀 10~30 s,温度为 60~80 °C,去除不锈钢表面的氧化物,多级逆流纯水冲洗后进行预镀镍。预镀镍溶液为 200~245 g/L Ni₂Cl₂·7H₂O 和 150~240 g/L HCl 组成,电流密度为 3~5 A/dm²,预镀时间为 20~60 s,温度为室温。最后将样品浸入镀铜电解液中进行电化学沉积铜。电解液由 180~220 g/L CuSO₄·5H₂O、40~60 g/L H₂SO₄ 以及含聚二硫二丙烷磺酸钠的添加剂组成,利用恒温加热器维持镀液

温度在 28±1 °C。电解液的体积约为 50 L,电流密度分别为 1、1.5 和 2 A/dm²,沉积时间为 1~6 h。

试验中所用的溶液均为分析纯药品与去离子水配置而成。

1.2 结构表征及性能测试

电沉积铜膜的表面形貌采用德国卡尔蔡司 (ZEISS) 的扫描电子显微镜 (SEM) 分析。利用德国霍梅尔公司的粗糙度轮廓仪对样品铜膜的表面粗糙度进行测量 (型号 T8000SC),测量时探针的移动速度为 0.15 mm/s,测量距离 4.8 mm,每个样品上测量三次,取平均值。

采用日本理学公司的 X 射线衍射仪分析铜膜的微观结构和结晶度,扫描角度范围为 20~80°,扫描速度为 4 (°)/min。根据铜膜的 X 射线衍射 (XRD) 测试结果,沉积铜膜的晶粒取向以晶面 (hkl) 的织构系数 $\delta_{Cu(hkl)}$ 来表征择优程度^[13],如式 (1) 所示:

$$\delta_{Cu(hkl)} = \frac{I_{(hkl)}/I_{0(hkl)}}{\sum_{i=1}^n I_{(hkl)}/I_{0(hkl)}} \times 100\% \quad (1)$$

式中, $I_{(hkl)}$ 和 $I_{0(hkl)}$ 分别为试样铜膜和标准铜粉末的晶面 (hkl) 的衍射峰积分强度。 n 为衍射峰个数,本文取 (111)、(200) 和 (220) 晶面进行计算,即 n 取值为 3。若各衍射面的织构系数 $\delta_{Cu(hkl)}$ 相同,则晶面取向是无序的;若某个晶面 (hkl) 的 $\delta_{Cu(hkl)}$ 大于平均值 (1/3),则该晶面择优取向,且 $\delta_{Cu(hkl)}$ 值越大,说明择优取向程度越高。

铜膜的剩余电阻率 (RRR) 是判断耦合器的热传导和表面电导的参数。测量铜膜的 RRR 值采用等效并联电路的方法,把铜膜和不锈钢基体看作并联的两个部分^[14],即铜膜的电阻 R_{Cu} 可以依据式 (2) 计算:

$$R_{Cu} = \frac{R_{st}R}{R_{st} - R} \quad (2)$$

式中, R_{Cu} 、 R_{st} 和 R 分别为铜膜的电阻、基体不锈钢的电阻和镀膜后样品的电阻。

剩余电阻率 (RRR) 定义为材料在常温 ($T=300$ K) 下的电阻与液氮沸点 ($T=4.2$ K) 下的电阻比值^[7]。采用标准四电极测量法分别测定样品镀膜后和未镀膜的基体在常温和液氮沸点下的电阻,通过式 (2) 分别计算出铜膜在常温下的电阻 $R_{Cu(T=300\text{ K})}$ 和在液氮沸点下的电阻 $R_{Cu(T=4.2\text{ K})}$ 。那么铜膜的 RRR 值即为 $R_{Cu(T=300\text{ K})}$ 与 $R_{Cu(T=4.2\text{ K})}$ 比值,如式 (3) 所示:

$$RRR = \frac{R_{Cu(T=300\text{ K})}}{R_{Cu(T=4.2\text{ K})}} \quad (3)$$

2 结果与讨论

2.1 铜膜的 RRR 值

图 1 为电流密度为 1、1.5 和 2 A/dm² 的沉积铜膜分别在常温 (a) 和超低温下 (b) 的电阻值以及铜膜 RRR 值 (c) 随膜厚的变化曲线。结果表明,不同沉积电流密度下的铜膜在常温和超低温

下的电阻值都随着镀层厚度增加而减小,亦即镀层厚度的增加有利于提高铜膜的导电性。对比图 1a 和 1b 发现,不同电流密度下沉积的铜膜在超低温下的电阻值远小于常温下的电阻值。在镀层厚度相同的条件下,高电流密度下沉积的铜膜在常温 and 超低温下的电阻值比低电流密度下的大。

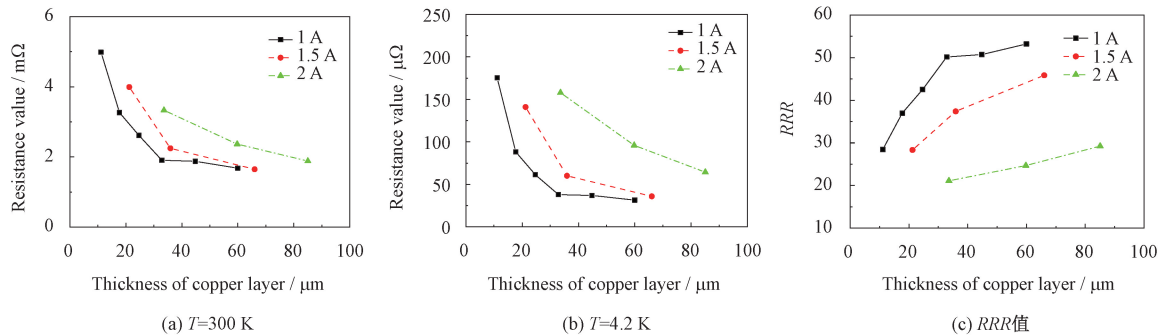


图 1 不同电流密度下不同厚度铜膜的电阻值和 RRR 值

Fig. 1 Resistance values and RRR of copper films versus the thickness of copper layer for different current densities

对铜膜在常温和超低温下的电阻值依据式(3)计算,获得不同电流密度下的铜膜的 RRR 值,如图 1c 所示。在镀层厚度相同的条件下低电流密度沉积的铜膜 RRR 值大于高电流密度下的。不同电流密度下沉积铜膜的 RRR 值随着镀层厚度的增加而增加。值得注意的是,在常温下铜膜厚度相对薄时阻值差别相对大,而铜膜相对厚时阻值的差别相对小(图 1a),但对于超低温情况则恰恰相反(图 1b),于是出现了电流越大 RRR 值越小(图 1c)。为了确定影响铜膜 RRR 值的因素,下面将对不同电流密度

下沉积不同时间的铜膜形貌、表面粗糙度和铜膜的织构进行分析。

2.2 铜膜的表面形貌

铜膜的表面形貌随电流密度和沉积时间的变化如图 2 所示。在不同电流密度下,随着沉积时间的增加,铜膜的表面形貌变得更致密,晶胞结节变大。这也意味着随着电沉积时间的延长,结节尺寸增大,使铜膜的电阻值下降,导电性提高^[15]。这可以解释为什么在 1、1.5 和 2 A/dm² 电流密度下沉积铜膜的电阻值随着沉积时间的延长而降低,如图 1 所示。

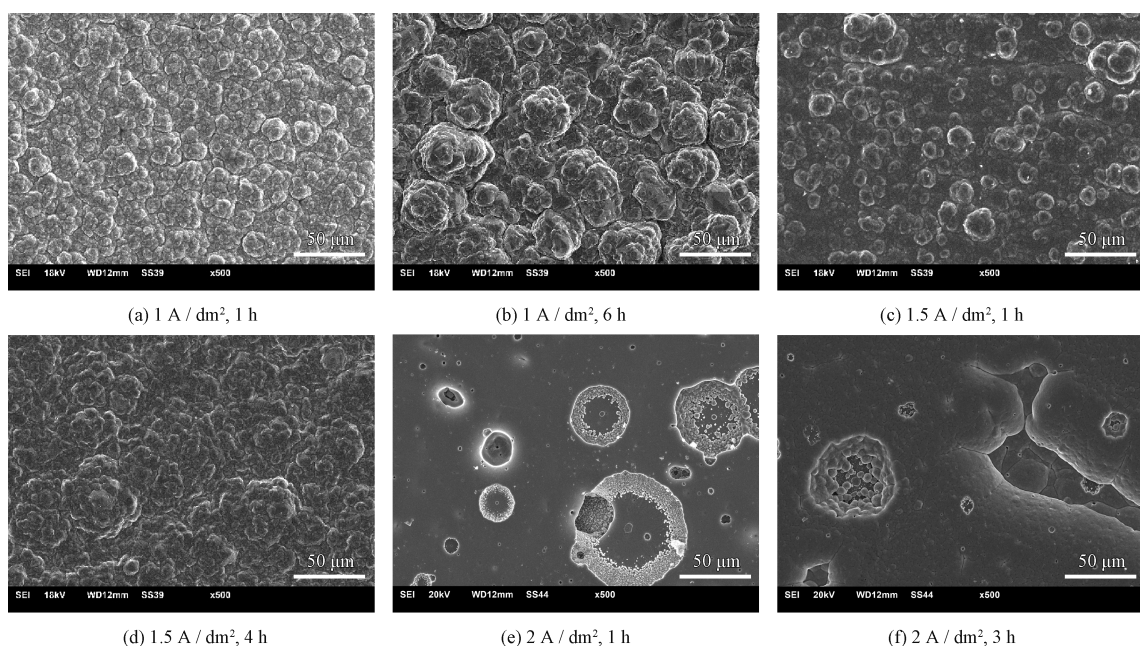


图 2 不同电流密度下沉积不同时间铜膜的表面形貌

Fig. 2 Surface morphology of copper films with current densities for different deposition time

比较不同电流密度下沉积的铜膜发现,电流密度为 1 和 1.5 A/dm² 沉积的铜膜宏观显示为半光亮镀层,微观上呈颗粒状,聚集在一起,如图 2a 和 2c。随着沉积时间的延长,铜膜聚集长大,晶胞结节尺寸更大,如图 2b 和 2d。电流密度为 2 A/dm² 时沉积的铜膜宏观显示为光亮镀层。微观上 2 A/dm² 沉积的铜膜有明显的孔洞缺陷,铜膜呈台阶式三维小颗粒堆砌聚集,随着沉积时间的延长,小颗粒聚集在一起,但是铜膜的孔洞缺陷仍然存在,如图 2e 和 2f。当电流密度较小时,在阴极还原的铜离子通过扩散的方式浸入金属晶格,铜离子在阴极表面吸附还原,形核长大,最终呈现颗粒状镀层。随着电流密度增加到 2 A/dm² 时,阴极极化程度和过电位增大,添加剂吸附在阴极表面,与铜离子形成络合物,增大电化学反应阻力,造成放电迟缓效应,利于新的晶核形成,使得晶核形成速度大于晶体长大速度,结晶细化^[16]。

在电流密度为 2 A/dm² 下沉积的铜膜的 *RRR* 值小于在其他电流密度下沉积铜膜的(图 1c),可能的原因是 2 A/dm² 下沉积的铜膜中有孔洞缺陷和添加剂被包在镀层中形成碳杂质,而孔洞缺陷和碳杂质会导致铜膜在低温下的电阻值增加^[17-18],而对常温下的电阻值影响较小,从而使铜膜的 *RRR* 值降低。

2.3 铜膜的表面粗糙度

图 3 为在电流密度 1、1.5 和 2 A/dm² 下沉积铜膜的表面粗糙度随镀层厚度的变化。由图可知,铜膜表面粗糙度随着镀层厚度的增加而增加。在电沉积铜膜过程中,被镀件表面不均匀电流分布将导致镀层表面粗糙度增加,随着沉积时间的延长,即镀层厚度的增加,镀层表面将变得更粗糙。从图 2 的微观形貌上也可以观察到随着电沉积时间延长,镀层表面颗粒度变大,导致粗糙度增加。同一镀层厚度

的条件下,低电流密度下沉积铜膜的表面粗糙度大于高电流密度沉积的。这是由于低电流沉积的镀层呈颗粒状,较为粗糙,而随着电流密度提高,添加剂电沉积中作用越来越明显,尤其当电流密度为 2 A/dm² 时,镀液的添加剂使镀层结晶细化,表面平整,粗糙度明显下降。

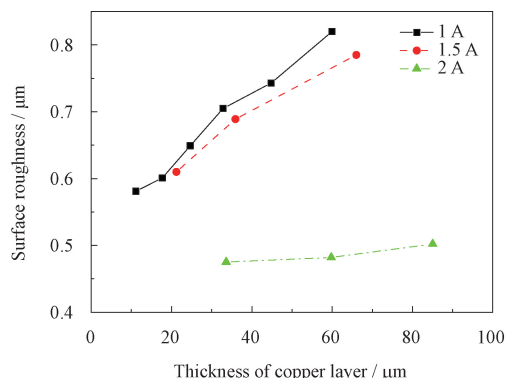


图 3 不同电流密度下不同厚度铜膜的表面粗糙度

Fig. 3 Surface roughness of copper films with different thickness

对比图 1c 和图 3 可知,铜膜的 *RRR* 值随着表面粗糙度的增加而变大。铜膜的表面粗糙度是电沉积过程中铜膜生长微观结构的综合反映,高低起伏越大,表面粗糙度值就越大。铜膜的表面粗糙度虽然不是影响铜膜 *RRR* 值的决定因素,但在表现上与 *RRR* 值有很好的对应关系。铜膜的 *RRR* 值与表面粗糙度是否有本质联系有待进一步研究。

2.4 铜膜的 XRD

在电流密度为 1、1.5 和 2 A/dm² 下沉积不同厚度后的铜膜均呈现出 (111) 晶面的择优取向,如图 4 所示。在硫酸盐体系中观察到沉积铜膜的特殊择优取向是 (111) 晶面^[19-20]。许多试验结果表明,沉积镀层厚度为几微米或更厚,就不再受基体影响^[21-22]。铜膜沉积初期受基体原子影响,以基体外

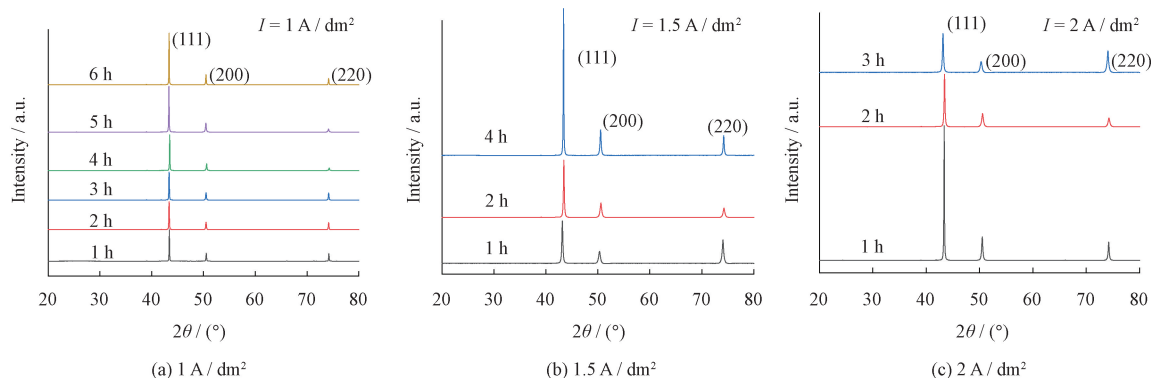


图 4 不同电流密度下沉积不同厚度铜膜的 XRD

Fig. 4 XRD patterns of copper films for different current densities and deposited thickness

延方式生长,随着沉积铜层厚度增加,基体外延生长影响逐渐消失,铜的电结晶处于过渡生长阶段,此时铜膜呈现较低的(111)晶面择优取向。沉积铜膜的厚度继续增大,铜的电结晶生长完全受电沉积条件控制,形成明显的(111)晶面择优取向,并随着镀层厚度增加,织构度增大。

对不同电流密度下沉积不同厚度铜膜的(111)晶面择优取向程度进一步分析,获得织构系数 $\delta_{\text{Cu}(111)}$ 如图5所示。在1和1.5 A/dm²电流密度下沉积的铜膜的织构度大于0.55,并随镀层厚度的增加而增大,即随着电沉积铜膜厚度增加,(111)晶面的衍射峰强度不断的提高,而其他晶面的衍射强度逐渐减小。但是,在2 A/dm²电流密度下沉积铜膜(111)晶面的织构度随着镀层厚度增加而减小,即随着电沉积铜膜的时间延长,铜膜(111)面的择优取向减弱。这是由于沉积电流密度提高,铜膜沉积过电位增大,添加剂与铜离子形成的络合物吸附在阴极表面,促进新的晶核形成,阻碍晶粒长大,而铜膜的晶面择优取向由晶体的生长方向和生长速度竞争形成^[23],当沉积电流密度为2 A/dm²,晶核形成速度大于晶粒长大速度,随着沉积厚度的增加,添加剂的作用使得铜膜(200)和(220)晶面的衍射强度不断提高,从而(111)晶面的织构系数降低。具有面心立方结构的铜膜,表面能和界面能最小的取向是(111)晶面^[24]。LIN等^[15]认为提高(111)/(200)峰值强度比,可以降低铜膜的电阻率。对比不同电流密度下铜膜的RRR值可知,(111)晶面择优取向的织构系数越大,RRR值越大,然而2 A/dm²沉积下的铜膜RRR值减小主要受铜膜的孔洞缺陷和夹杂影响。

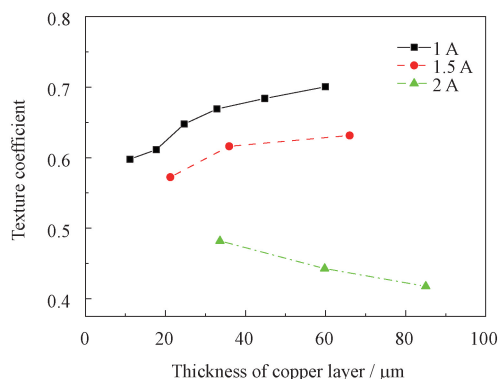


图5 不同电流密度下沉积铜膜(111)面的织构系数

Fig. 5 Texture coefficient of (111) crystal plane of copper films for different current densities and deposited thickness

2.5 镀铜膜工艺应用

1.3 GHz 功率耦合器是硬 X 射线自由电子激光装置的重要组成部分,作为连接功率源和超导腔的

桥梁,既需要在低损耗下传输微波功率,又必须避免超导腔低温受到外界的影响。

因此,耦合器要求既具有良好的导电性又兼顾合适的热隔离性。

功率耦合器的低温漏热主要由两部分组成,即静态下的热传导和动态情况下的生热。在静态下的热传导由温度梯度造成,即由物体的高温部分传向低温部分,与膜层厚度和材料的导热系数有关,其表达式如下^[7]

$$Q_{\text{cond}} = \frac{A_{\text{Cu}}}{L_{\text{eff}}} \int_{T_C}^{T_H} K_{\text{Cu}}(T) dT \quad (4)$$

式中, Q_{cond} 为静态热, A_{Cu} 为铜膜的横截面积, $A_{\text{Cu}} = \pi e_{\text{Cu}} \cdot D_{\text{eff}}$, e_{Cu} 为铜膜的厚度, D_{eff} 为铜膜的表面直径; K_{Cu} 为铜膜的热导率,是温度的函数; L_{eff} 为铜膜长度; T_C 表示低温; T_H 表示高温。

另一损耗是在动态情况下的生热,即在电磁微波作用下金属表面产生的欧姆损耗,与场强和材料的表面电阻率有关,其表达式如下^[7]

$$Q_{\text{RF}} = \frac{1}{2} \iint R_{\text{Cu}}(T) H_s^2 dS \quad (5)$$

式中, Q_{RF} 为在动态下的生热; R_{Cu} 和 H_s 分别为铜膜的表面电阻率和金属表面的高频磁场,其中 R_{Cu} 是温度的函数。

由式(4)和(5)知,静态热正比于铜膜的厚度和热导率,即 $Q_{\text{cond}} \propto e_{\text{Cu}} \cdot K_{\text{Cu}}$;而动态热正比于铜膜的表面电阻率,即 $Q_{\text{RF}} \propto R_{\text{Cu}}(T)$ 。在功率耦合器镀铜膜上,为了降低在静态下的热传导,可以降低铜膜的纯度和减小铜膜的厚度。为了减小在动态情况下的生热,可以降低在低温下铜膜的电阻,即提高铜膜的纯度和增大其厚度。由以上分析可知,静态漏热与动态生热是一对矛盾体,而铜膜的RRR值恰好是平衡两种能量损耗的重要指标。

铜膜的RRR值是铜膜在常温与液氮下的电阻比值,不仅可以表征电导率和热导率的大小,也是反映材料内部杂质或缺陷的重要手段^[25]。铜膜具有高电导率可以减小传输微波的功率损耗,而低热导率又可以降低超导腔在低温下的热传导,减少冷却能量损耗,降低成本。铜膜的RRR值是影响功率耦合器的微波能量传输和热隔离性能的重要参数^[26-27],其值越大则导电性能越好,热隔离性相对较差,因此铜膜的RRR值通常需要在一范围内。

上海硬 X 射线自由电子激光装置使用的1.3 GHz 功率耦合器是包含异形波纹管的管状结构,要求在波纹管状的内壁上镀铜膜,设计的平均功率为14 kW时要求铜膜的RRR值在30~80范围

内。在实际镀膜过程中发现若采用较大电流密度对 1.3 GHz 功率耦合器进行电沉积铜膜时,会导致功率耦合器的边缘出现毛刺和镀层均匀性差等缺陷,结合对 1.3 GHz 功率耦合器的铜膜厚度和 RRR 值要求,选择电流密度为 1 A/dm^2 ,沉积时间为 4 h 的镀铜工艺应用于此功率耦合器国产化首次研制。这与我们前面关于 RRR 值分析是一致的。

1.3 GHz 功率耦合器的铜膜与基体结合力通过拉伸和压缩波纹管 10 mm(总变形量 20 mm),重复 10~20 次,液氮与 85~95 °C 的热水交替冲击 3 次,6~8 MPa 高压水喷淋冲洗 8~10 min 测试,观察铜膜均没有出现起皮和脱落现象,说明铜膜与基体结合牢固。1.3 GHz 功率耦合器老练测试在驻波状态下的脉冲功率为 15 kW,连续功率为 7 kW,持续 12 h,而行波状态下的脉冲功率为 30 kW,连续功率为 14 kW,持续 6 h。老练测试后拆开 1.3 GHz 功率耦合器,观察其内表面的铜膜未出现氧化和脱落现象,满足实际工程的应用要求。

3 结论

(1) 铜膜的 RRR 值与电沉积铜膜的晶胞结节和孔洞缺陷有关。低电流密度下沉积铜膜时间延长,铜膜的晶胞结节变大,提高了铜膜的 RRR 值。但是铜膜的孔洞缺陷会导致 RRR 值大幅度降低。

(2) 硬 X 射线自由电子激光装置的 1.3 GHz 功率耦合器采用电流密度为 1 A/dm^2 ,沉积时间为 4 h 的镀铜工艺,铜膜的 RRR 值、铜膜与基体的结合力、高低温适应性以及微波功率等性能均满足实际工程应用要求。

参 考 文 献

- [1] SHU Q, SUSTA J T, CHENG G, et al. High power coupler for the tesla superstructure cavities[C]//Proceedings of 21st PAC. Knoxville, Tennessee, 2005: 3141-3143.
- [2] BELOMESTNYKH S. Overview of input power coupler developments, pulsed and CW[C]//Proceedings of SRF2007. Peking University, Beijing, China, 2007: 419-423.
- [3] JENHANI H, BOSLAND P, CARBONNIER P, et al. Input power coupler for the IFMIF SRF Linac [C]//Proceedings of IPAC2012. New Orleans, Louisiana, USA, 2012: 2200-2202.
- [4] GARVEY T. The design and performance of CW and pulsed power couplers[J]. Physica C, 2006, 441: 209-215.
- [5] SINGER X, WEN H M, SINGER W, et al. Properties and structure of electrodeposited copper layers in parts of the TTF main coupler [C]//Proceedings of the SRF2003. Lübeck-Travemünde, Germany, 2012: 8-12.
- [6] BENVENUTI C, COSSO R, LLIE D, et al. Copper coatings for the main couplers of the LEP2 superconducting RF cavities [C]//CERN LPE, 1994: LEP2-94-21.
- [7] FOUAIDY M, HAMMOUDI N. RRR of copper coating and low temperature electrical resistivity of material for TTF couplers[J]. Physica C: Superconductivity, 2006, 441(1): 137-144.
- [8] LIU C W, TSAO J C, TSAI M S, et al. Effects of wetting ability of plating electrolyte on Cu seed layer for electroplated copper film[J]. Journal of Vacuum Science & Technology, 2004, 22(6): 2315-2320.
- [9] CHENG H Y, TRAN D P, TU K N, et al. Effect of deposition temperature on mechanical properties of nanotwinned Cu fabricated by rotary electroplating[J]. Materials Science and Engineering A, 2021 (10): 141065.
- [10] RICOYUSON C A, HORNYAK G L, BORA T. Cyanide-free environment-friendly alternative to copper electroplating for zinc die-cast alloys [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2021: 1-9.
- [11] 张孟笛, 蒋智韬, 李玉阁, 等. 靶基距对 Cu/Si(100)薄膜结构和残余应力的影响[J]. 中国表面工程, 2020, 33(6): 86-92.
MENG Di, JIANG Zhitao, LI Yuge, et al. Effects of target-substrate distance on structure and residual stress of Cu/Si(100) thin films [J]. China Surface Engineering, 2020, 33(6): 86-92. (in Chinese)
- [12] LATT K M, LEE Y K, LI S, et al. The impact of layer thickness of IMP-deposited tantalum nitride films on integrity of Cu/TaN/SiO₂/Si multilayer structure [J]. Materials Science and Engineering B, 2001, 84(3): 217-223.
- [13] 黄胜涛. 固体 X 射线[M]. 北京: 高等教育出版社, 1985: 274.
HUANG Shengtao. The X-ray study for solid state[M]. Beijing: Higher Education Press, 1985: 274. (in Chinese)
- [14] 温华明. 高梯度射频超导腔及其功率耦合器材料的研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2005.
WEN Huaming. Material investigation for high gradient RF superconducting cavities and power couplers [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2005. (in Chinese)
- [15] LIN C T, LIN K L. Effects of current density and deposition time on electrical resistivity of electroplated Cu layers[J]. Journal of Materials Science Materials in Electronics, 2004, 15(11): 757-762.
- [16] 蔡元兴, 孙齐磊. 电镀电化学原理[M]. 北京: 化学工业出版社, 2014: 155.
CAI Yuanxing, SUN Qilei. Principle of electroplate electrochemistry[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2014: 155. (in Chinese)
- [17] 尹成厚, 刘东立, 甘智华, 等. 基于低温制冷机的铝合金 RRR 值测试[J]. 低温工程, 2015(4): 27-32.
YIN Chenghou, LIU Dongli, GAN Zhihua, et al. Measurement of RRR for aluminum alloy based on cryocooler[J]. Cryogenics, 2015 (4): 27-32. (in Chinese)
- [18] LIU C W, WANG Y L, TSAI M S, et al. Effect of plating

- current density and annealing on impurities in electroplated Cu film[J]. *Journal of Vacuum Science Technology*, 2005, 23(4): 658-662.
- [19] LEE D N, KANG S, YANG J. Relationship between initial & recrystallization textures of copper electrodeposits [J]. *Plating and Surface Finishing*, 1995, 82(3): 76-79.
- [20] FUKUNAKA Y. Structural variation of electrodeposited copper film with the addition of an excess amount of H_2SO_4 [J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 1990, 137(1): 221-232.
- [21] AMBLARD J, EPELOIN I, FROMENT M, et al. Inhibition and nickel electrocrystallization [J]. *Journal of Applied Electrochemistry*, 1979, 9(2): 233-242.
- [22] REDDY A K N. Preferred orientations in nickel electro-deposits; I. The mechanism of development of textures in nickel electro-deposits [J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 1963, 6(2): 141-152.
- [23] 辜敏, 杨防祖, 黄令, 等. 高择优取向铜镀层的电化学形成及其表面形貌[J]. *物理化学学报*, 2002, 18(11): 973-978.
GU Min, YANG Fangzu, HUANG Ling, et al. The formation of copper electrodeposits with highly preferred orientation and their surface morphology [J]. *Acta Physico-Chimica Sinica*, 2002, 18(11): 973-978. (in Chinese)
- [24] HARPER J M E, CABRAL C, ANDRICACOS P C, et al. Mechanisms for microstructure evolution in electroplated copper thin films[J]. *Mrs Proceedings*, 1999, 564: 387.
- [25] ROSENBERG H M. *Low temperature solid state physics* [M]. Oxford: Clarendon Press, 1963.
- [26] HUANG T M, PAN W M, MA Q, et al. High power input coupler development for BEPCII 500 MHz superconducting cavity [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2010, 623(3): 895-902.
- [27] DOHLUS M, KOSTIN D, MOLLER W D. Tesla RF power coupler thermal calculations [C]//Lübeck, Germany, 2004, MOP67: 174-176.

作者简介: 张帅, 男, 1987 年出生, 博士研究生, 工程师。主要研究方向为真空电子器件的表面处理。

E-mail: zhangshuai8859@163.com