

doi: 10.11933/j.issn.1007-9289.20220123001

筒内高功率脉冲磁控溅射放电等离子体的空间分布及输运行为*

崔岁寒 李体军 李蕊 吴忠灿 马正永 吴忠振
(北京大学深圳研究生院新材料学院 深圳 518055)

摘要: 增强对高功率脉冲磁控溅射 (HiPIMS) 过程中等离子体分布及输运行为的理解是控制涂层沉积过程并优化涂层性能的关键, 尤其是对于筒内放电, 等离子体分布与输运过程更加复杂, 影响粒子运动行为的因素更加多样。针对筒内 HiPIMS 放电, 并耦合电磁约束离子输出系统, 以 Ar / N₂ / Cr 磁控溅射体系中的主要组分及其相关反应和运动规律为研究对象, 利用检验粒子蒙特卡罗 (MC) 方法对 Ar、N₂ 和 Cr 三类主要演化粒子的空间演变过程进行仿真, 发现离子输出束流中的各粒子呈现出不同的空间分布。其中, 质量大、离子能量高的金属离子 Cr⁺ 的输出束流最窄, 而质量小、离子能量低的气体离子 N⁺ 的输出束流范围最宽。利用高精度光谱仪测出 Ar⁺、N⁺ 和 Cr⁺ 的特征光谱强度随空间的变化, 与仿真得到的离子空间分布吻合。同时, 利用该体系可在不同的沉积位置制备出不同 Cr / N 比的 Cr_xN 涂层, 实现多种成分的一次性制备或同一成分的可控制备。

关键词: 筒内放电; 等离子体仿真; 等离子体输运特性; 离子空间分布

中图分类号: O539

Plasma Spatial Distribution and Transport Behavior of High Power Impulse Magnetron Sputtering in Cylindrical Cathode

CUI Suihan LI Tijun LI Rui WU Zhongcan MA Zhengyong WU Zhongzhen
(School of Advanced Materials, Peking University Shenzhen Graduate School, Shenzhen 518055, China)

Abstract: Understanding of plasma spatial distribution and transport behavior in high power pulsed magnetron sputtering (HiPIMS) is the key to control the deposition process and optimize the properties of coatings. Especially for HiPIMS in cylindrical cathode, the plasma distribution and the transport process are more complex, and the particle motion behavior is determined by various factors. Aiming at the HiPIMS discharge in cylindrical coupled with the electromagnetic system, the reaction and the movement of the main particles in Ar / N₂ / Cr system are studied. The evolution processes of Ar, N₂ and Cr particles are simulated with the test particle Monte Carlo (MC) model. The simulation results reveal that different particles present different spatial distribution. In particular, the metal ion Cr⁺ with large mass and high ionic energy shows the narrowest output beam, while the gas ion N⁺ with low mass and ionic energy shows the widest output beam range. The characteristic spectrums of Ar⁺, N⁺ and Cr⁺ are detected by the optical emission spectrometer (OES), and the spatial evolutions are in consistent with the simulation. Finally, a series of Cr_xN coatings with different Cr / N ratios are prepared by at different deposition positions. In this way, coatings with multiple components can be prepared at one time, and coatings with certain component can be prepared under control.

* 深圳市科技计划 (SGDX20201103095406024 和 JSGG20191129112631389) 和北京大学深圳研究生院引进人才科研启动经费 (1270110273) 资助项目。

Fund: Supported by Shenzhen Science and Technology Research Grants (SGDX20201103095406024 and JSGG20191129112631389), and Peking University Shenzhen Graduate School Research Start-up Fund of Introducing Talent (1270110273).

20220123 收到初稿, 20220822 收到修改稿

Keywords: discharge in cylindrical cathode; plasma simulation; plasma transport behavior; plasma spatial distribution

0 前言

高功率脉冲磁控溅射 (High power impulse magnetron sputtering, HiPIMS) 技术^[1]能产生具有高离化率的等离子体^[2]并制备出综合性能优异的涂层^[3-5], 但一直受到放电不稳定^[6]和沉积速率低^[7]两个固有技术缺陷的制约。基于 HiPIMS 技术开发的筒形溅射阴极^[8], 不仅能够将放电限制在筒内避免“金属液滴”沉积, 同时配合电磁系统可引导离子输运并提高沉积速率。然而, 与传统的平面磁控溅射相比, 筒内放电的等离子体空间分布及输运行为更加复杂^[9], 相应的决定因素也更为多样^[10-11], 这为控制筒形溅射阴极的涂层沉积过程, 优化其涂层性能带来了极大的困难和挑战。

研究等离子体空间分布和输运行为, 最常用的方法包括离子电流测量^[12]、光谱质谱检测^[13]、沉积涂层表征^[14]以及等离子体仿真^[15-16]等。本课题组前期利用上述方法对筒内放电的等离子体空间特性进行了研究。肖舒等^[8]利用 Langmuir 探针检测到筒形溅射阴极中央存在较高的离子电流, 表明筒内等离子体放电具有强烈的类空心阴极效应。崔岁寒等^[9]进一步利用粒子网格 / 蒙特卡罗法和等离子体流体模型仿真筒形溅射阴极的等离子体输运特性, 发现离子束流呈现出先中央聚集, 然后在浓度差作用下向外扩散的输出路径, 使得等离子体损耗得到大幅延缓。基于此特殊的输运行为, 耦合电磁约束离子输出系统^[17]被开发出来, 特征光谱强度测试表明等离子体分布随电磁场强度的大小呈现出聚焦和扩散的分布特征, 以此实现了对离子束流的调控。然而, 由于等离子体体系内不同粒子的粒子属性和反应过程存在差异, 其放电输运行为不尽相同^[10]。但是当前针对筒内等离子体输运特性的研究主要聚焦于离子束流整体的输运行为, 并未关注其中各组分的空间差异, 故而无法预测涂层成分与空间位置的关系, 因此尚且无法为筒形溅射阴极的实际涂层沉积过程提供有效指导。

鉴于此, 本研究针对筒形溅射阴极耦合电磁约

束离子输出系统, 以 Ar / N₂ / Cr 的 HiPIMS 体系中的主要组分及其相关反应和运动规律为研究对象, 利用检验粒子蒙特卡罗方法^[18]对 Ar、N₂ 和 Cr 三类主要演化粒子的空间演变过程进行了仿真, 发现离子输出束流中的各粒子呈现出不同的空间分布。随后利用高精度光谱仪测出 Ar⁺、N⁺ 和 Cr⁺ 的特征光谱强度的空间变化趋势, 测试结果与仿真结果吻合。最后, 利用该体系在不同的沉积位置制备出不同 Cr / N 比的 Cr_xN 涂层, 进一步验证不同粒子空间分布的差异, 实现多种成分涂层的一次性制备。

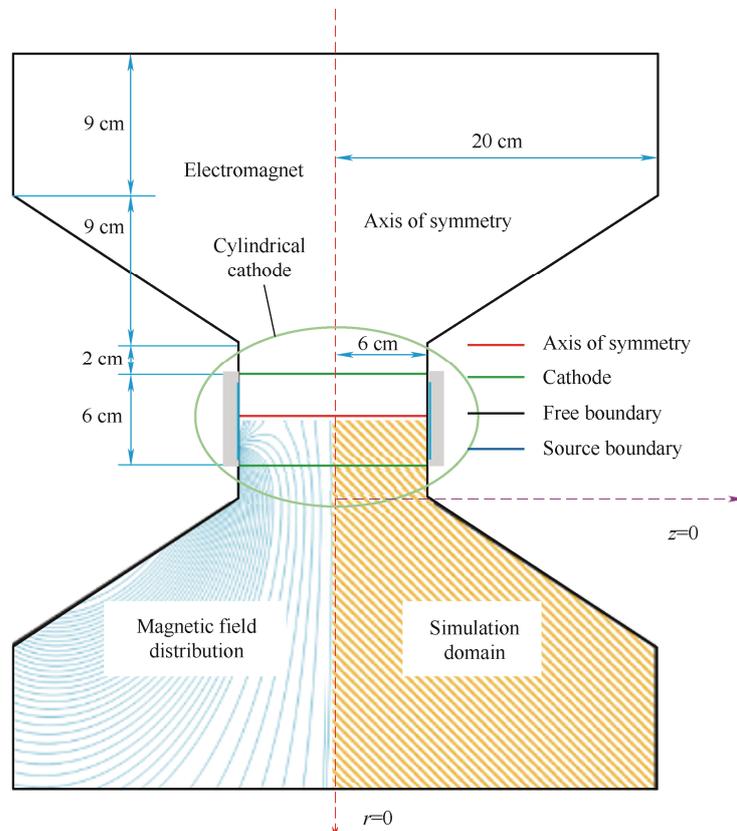
1 筒内等离子体输运特性仿真

1.1 仿真方法

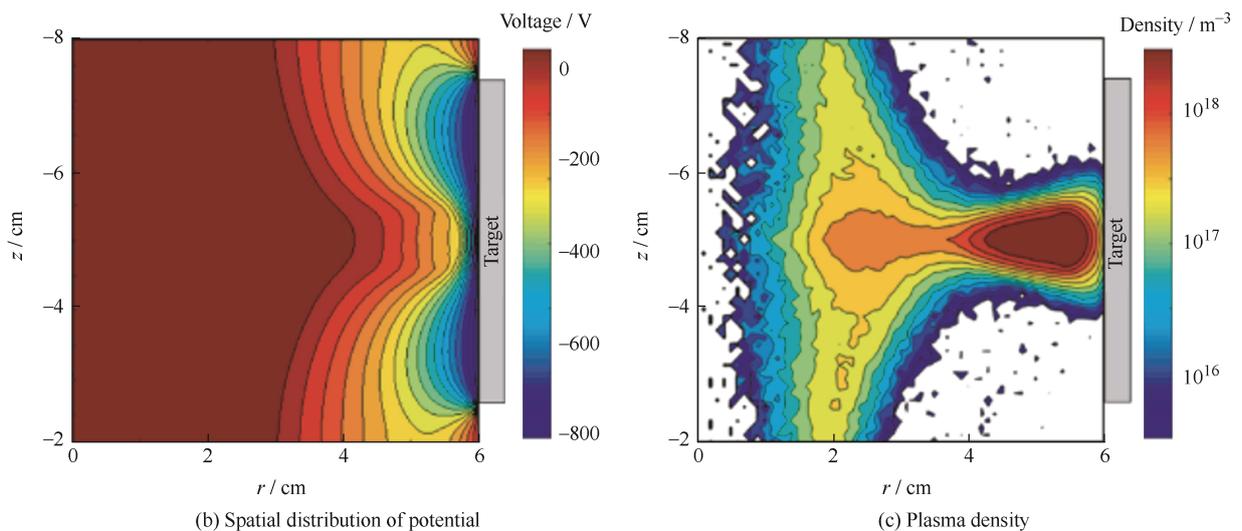
检验粒子蒙特卡罗方法的模型几何示意图如图 1a 所示, 包括筒形溅射阴极和电磁约束离子输出系统两部分。根据几何对称性, 仿真区域可被简化为图中的阴影区域。模型采用柱坐标进行计算, 利用 Matlab 软件自主编辑实现, 在仿真过程中, 将仿真区域划分成多个尺寸为 1 mm×1 mm 的正方形网格, 仿真时间步长取为 1×10⁻¹¹ s。根据本课题组之前的工作^[17], 取电磁线圈电流为 15 A 条件下的磁场 (图 1a)、电场 (图 1b) 和等离子体密度分布 (图 1c) 作为模型的背景场, 在仿真过程中视为稳态。检验粒子蒙特卡罗方法模型基于 DEPLA 等^[18]的工作, 以 Ar / N₂ / Cr 体系中的主要中性粒子 (包括 Cr 原子, Ar 原子和 N₂ 分子) 为初始仿真对象, 模拟其运动过程, 并追踪其运动轨迹。不同的是, 本文除考虑与背景气体 (Ar / N₂) 弹性碰撞以外, 进一步引入了电离、(退) 激发和解离等电子冲击过程, 以及电荷交换和潘宁电离反应, 具体如表 1 所示。每种初始检验粒子的总数为 1 万个, 在仿真过程中忽略分子间作用力, 因此可认为中性粒子不受力, 而在电离为离子后受到电场力和磁场力。金属粒子来源于靶材的溅射, 因此 Cr 原子初始由靶面即源边界 (图 2a 深色线) 释放, 概率密度分布与靶面溅射强度成正比, 初始速度由 Trim 软件^[19]计算得出; 而混合气体是由外界流入筒形溅射阴极, 故而 Ar 原子和

N_2 分子从筒形溅射阴极入口 (图 2a 中浅线) 均匀释放, 初始速度满足 Maxwell 分布。当检验粒子运动至触碰仿真区域的对称边界时视为发生反弹, 而

当其触碰自由边界时视为出界并离开仿真区域。最后筛选出检验粒子中最终电离为离子的样本, 分析其运动轨迹, 并换算为密度分布。



(a) Schematic diagram of the model



(b) Spatial distribution of potential

(c) Plasma density

图1 (a) 仿真模型的几何示意图及PIC / MCC模拟出的800 V, 1.0 Pa条件下筒形溅射阴极内的(b)电势分布和 (c) 等离子体密度分布图

Fig. 1 (a) Schematic diagram of the model; spatial distribution of (b) the potential and (c) the plasma density at 800 V, 1 Pa simulated by PIC/MCC model

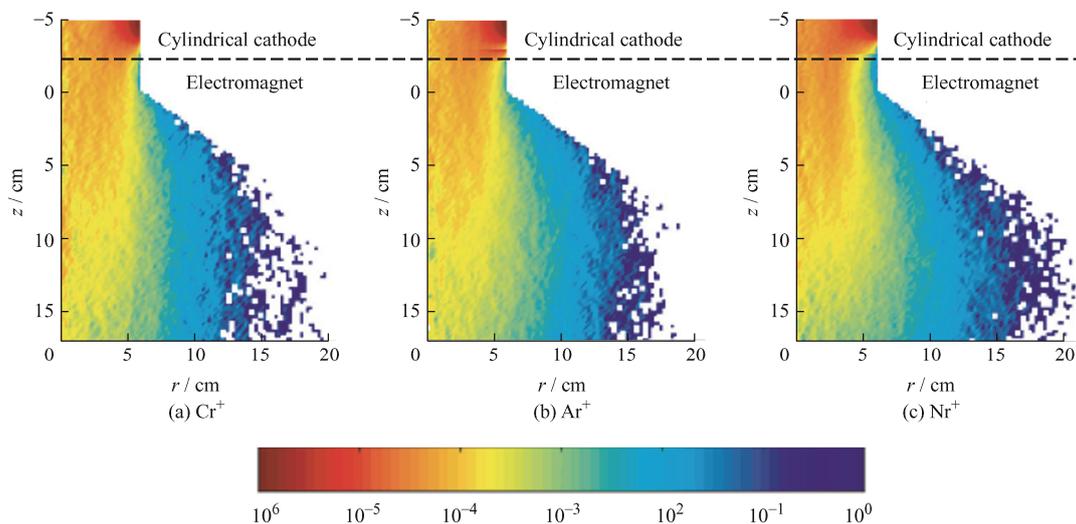
表1 Cr/Ar/N₂体系的主要反应表Table 1 Main reactions in Cr/Ar/N₂ plasma system

Particle	Reaction equation	Energy / eV	Type
Cr	$\text{Cr}+\text{e}\rightarrow\text{Cr}^++2\text{e}$	6.8	Ionization
	$\text{Ar}^++\text{Cr}\rightarrow\text{Cr}^++\text{Ar}$	Hard sphere	Charge exchange
	$\text{Ar}^m+\text{Cr}\rightarrow\text{Cr}^++\text{Ar}+\text{e}$	Hard sphere	Penning ionization
Ar	$\text{Ar}+\text{e}\rightarrow\text{Ar}^++2\text{e}$	15.76	Ionization
	$\text{Ar}+\text{e}\rightarrow\text{Ar}^m+\text{e}$	11.56	Excitation
	$\text{Ar}^m+\text{e}\rightarrow\text{Ar}+\text{e}$	-11.56	Deexcitation
	$\text{Ar}^m+\text{e}\rightarrow\text{Ar}^++2\text{e}$	4.2	Ionization
	$\text{Ar}^++\text{Ar}\rightarrow\text{Ar}^++\text{Ar}$	Hard sphere	Charge exchange
	N ₂	$\text{N}_2+\text{e}\rightarrow\text{N}_2^++2\text{e}$	15.6
$\text{N}_2+\text{e}\rightarrow\text{N}_2^m+\text{e}$		6.17	Excitation
$\text{N}_2^m\rightarrow\text{N}_2+h\nu$		-6.17	Deexcitation
$\text{N}_2^m+\text{e}\rightarrow\text{N}_2^++2\text{e}$		9.43	Ionization
$\text{N}_2+\text{Ar}^+\rightarrow\text{N}_2^++\text{Ar}$		Hard sphere	Charge exchange
$\text{N}_2+\text{e}\rightarrow 2\text{N}+\text{e}$		9.76	dissociation
$\text{N}_2^m+\text{e}\rightarrow 2\text{N}$		—	dissociation
$\text{N}+\text{e}\rightarrow\text{N}^++2\text{e}$		14.54	Ionization

1.2 筒内等离子体空间运输特性解析

图 2a、2b 和 2c 分别展示了检验粒子蒙特卡

罗模型仿真得到的 Cr⁺、Ar⁺和 N⁺离子的运动概率密度分布云。就单一离子而言，改了密度分布表征的是检验粒子到达某个位置的几率，实质上等效于实际的粒子密度分布的空间演变趋势。由图可见三种离子的概率密度是在筒形溅射阴极的靶面附近最高，这是靶面附近放电区域内的等离子体密度最高（图 1c），导致中性粒子在该区域发生电离或电荷交换碰撞而的概率最大，故而绝大多数的离子在该区域生成，可视为离子源头。由于筒形溅射阴极具有向内放电的特性^[9]，且阴极边缘的法向磁场抑制了等离子体的溢出损耗^[11]，故而离子产生后在浓度差的作用下向筒形溅射阴极的中央聚集，并随后沿着中央轴向向外输出，离子概率密度在 z 方向上逐渐降低。在离子束流离开筒形溅射阴极进入电磁线圈后，离子概率密度在中央轴最高，在 r 方向上逐渐降低，呈现出聚焦输出的状态。随着扩散的进行，离子不断与背景气体发生碰撞并发生散射，使得离子的聚焦效果逐渐减弱。对比图 2a、2b 和 2c，可明显看出三种离子轨迹的主要分布范围存在显著的差异：其中 Cr⁺的轨迹分布范围最窄，聚焦效果最明显，而 N⁺的轨迹分布范围最广，聚焦效果最差。

图 2 Cr⁺、Ar⁺和 N⁺的概率密度分布Fig. 2 Probability density distribution of Cr⁺, Ar⁺ and N⁺

为深入研究，进一步对图 2 中不同输出距离 (z=0、8 和 16 cm) 的离子概率密度分布进行统计，分别进行归一化处理，得到三种离子在不同输出距离上的聚焦效果，结果如图 3 所示。其中，z=0 cm

位于电磁约束离子输出系统的入口附近，此时三种离子的概率密度峰值均位于 r=3 cm 左右，表明各离子正处于从筒形溅射阴极靶面 (r=6 cm) 向中央轴 (r=0 cm) 聚焦的过程。随着扩散的进行，各离子的

概率密度峰值逐渐向筒形溅射阴极中央轴移动并出现差异。其中 Cr^+ 在 $z=8\text{ cm}$ 处, 归一化的离子概率密度峰值已位于中央轴上, 表明其向中央聚焦的速度快于 Ar^+ ($r=0.8\text{ cm}$) 和 N^+ ($r=1.2\text{ cm}$)。此外, 注意到随着输出距离 z 的增大, 在 $r>6\text{ cm}$ 区间内, 归一化的离子概率密度逐渐上升, 表明各离子输出范围逐渐变宽。其中, N^+ 的增幅最大, 表明其输出范围最宽; 而 Cr^+ 的增幅最小, 表明其输出范围最窄。由此可见, 在相同的位置, 不同种类的离子概率密度分布存在很大的差异, 导致等离子体组分呈现出非均匀的空间分布。可以进一步预测, 在不同的位置沉积获得的涂层, 涂层组分将出现显著的差异, 随着到中央轴距离的增大, 涂层中的 N 元素的占比将逐渐上升, 而 Cr 元素将逐渐下降。

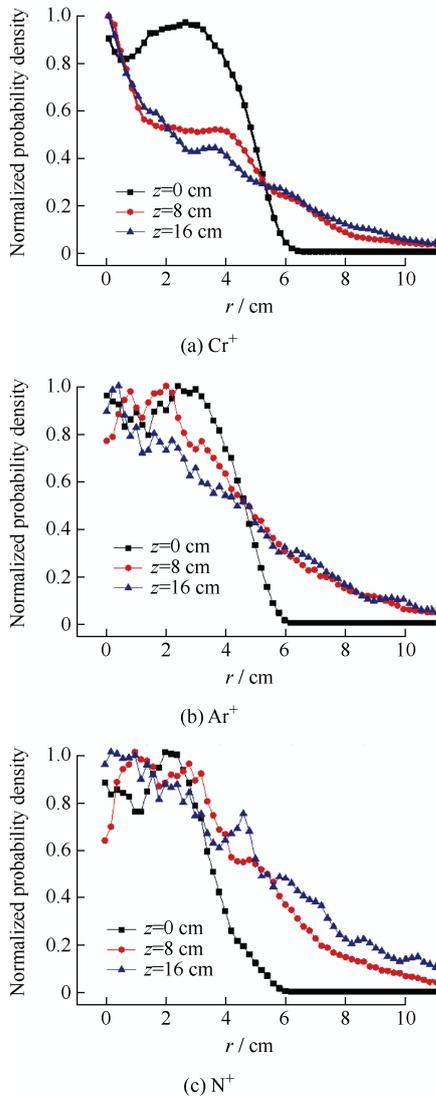


图 3 $z=0, 8$ 和 16 cm 条件下 Cr^+ 、 Ar^+ 和 N^+ 的归一化离子概率密度

Fig. 3 Normalized probability density distribution of Cr^+ , Ar^+ and N^+ (with $z = 0, 8, 16\text{ cm}$)

由于背景场是稳态的, 因此各离子空间分布不一致的关键原因是不同种类离子的本征特性和运动状态存在较大的差异。由于等离子体空间电势的变化主要集中在靶面鞘层和放电区域, 因此当离子在离开主要放电区域后, 即可视为只受洛伦兹力 \mathbf{F}_L (N) 的作用, 如式(1)所示。

$$\mathbf{F}_L = n_i e \mathbf{v}_\perp \mathbf{B} \quad (1)$$

式中, $n_i=1$ 为离子的电荷数, $e=1.6 \times 10^{-19}\text{ C}$ 为单位电荷, \mathbf{v}_\perp 为垂直于磁感线方向速度(m/s), \mathbf{B} 为磁感应强度(T)。由于洛伦兹力不做功, 只能单纯的充当向心力, 使离子的运动方向发生改变, 因此可同时用向心力公式表达, 如式(2)所示。

$$\mathbf{F}_L = m_i \mathbf{v}_\perp^2 / r_i \quad (2)$$

式中, m_i 为离子质量(kg)。 r_i 为离子运动轨迹的回旋半径(m), 可表征磁场对带电粒子的约束作用大小。当离子的回旋半径较大时, 离子不易被磁场束缚, 因此在离子输出过程中, 磁场的作用效果有限, 此时由浓度差引起的扩散机制对离子的输运有重要的作用。反之, 当离子的回旋半径较小时, 离子容易受到磁场束缚, 此时在离子输运过程中, 磁场的作用占据主导, 使得离子倾向于沿磁感线做回旋运动。进一步将式(1)代入式(2), 可得到离子运动回旋半径的表达式, 如式(3)所示。

$$r_i = m_i \mathbf{v}_\perp / eB \quad (3)$$

在磁场相同的条件下, 离子回旋运动的半径由离子质量和速度共同决定。显然, Cr^+ 、 Ar^+ 和 N^+ 三种主要离子的质量满足: $m_{\text{Cr}^+} > m_{\text{Ar}^+} > m_{\text{N}^+}$ 。因此, Cr^+ 最不易被磁场约束, 而 N^+ 最容易受磁场的影响。此外, Cr^+ 主要来源于体系中 Cr 原子的电离, 而 Cr 原子则来自于靶面的溅射, 因此 Cr 原子具有较大的初始能量。根据 Trim 软件的计算, 800 V 条件下, Ar^+ 溅射出的 Cr 原子的平均能量约为 15.85 eV 。由于电子的质量较小, 其与 Cr 原子的电离碰撞反应几乎不改变 Cr 的速度, 因此多数 Cr^+ 在能够继承 Cr 原子初始速度 (超过 7000 m/s)。与 Cr^+ 不同的是, Ar^+ 和 N^+ 则来源于外界流入的 Ar/ N_2 混合气体的电离, 气体的初始速度满足 Maxwell 分布, 假设真空室的温度为 300 K , 则 Ar 原子和 N_2 分子的初始平均速度分别约为 350 m/s 和 420 m/s , 远低于金属粒子。根据式(3), 体系中的金属离子 Cr^+ 的回旋运动回旋半径最大, 受磁场影响较弱, 因此大多数 Cr^+ 在浓差作用下向筒形溅射阴极中央扩散并堆积, 随

后再沿中央轴向外扩散^[9],呈现出较强的聚焦效果;相比而言,非金属离子 Ar^+ 和 N^+ 回旋运动的回旋半径较小,相当一部分气体离子倾向于沿磁感线做回旋运动,因此聚焦效果较弱。

随着扩散的进行,离子不断地与背景气体发生动量交换,其速度变化可由动量定理得到,如式(4)所示。

$$I = m_i \Delta v_i \quad (4)$$

当碰撞带来一个固定的冲量 I ($\text{N} \cdot \text{s}$)时,离子质量 m_i 越大,其速度变化量 Δv_i 越小。显然,在碰撞发生后, Cr^+ 的速度量改变较小,不易发生散射^[18],故而其输出范围最窄。相反地,体系中气体离子 N^+ 的质量最小,在与背景气体碰撞后其速度会发生明显变化,很容易发生散射。因此,随着扩散的进行, N^+ 的输出范围逐渐变宽。综上所述,离子性能和运动状态不同导致其输运特性的差异,随着扩散的进行,这种差异逐渐被放大,最终导致等离子体形成组分不均匀的空间分布。

2 筒内等离子体输运特性的试验验证

2.1 试验方法

筒形溅射阴极的HiPIMS放电所使用的设备示意图如图4a所示。靶材为Cr(99.9%),内径为120 mm,高为48 mm。筒形阴极两侧的电磁约束离子输出系统的线圈电流设置为15 A。设备被安装在自主设计的矩形真空腔(600 mm×600 mm×500 mm)内,配备有哈尔滨工业大学研制的HiPIMS电源^[20],其输出电压为0~1 kV,脉宽为50~400 μs ,频率为50~300 Hz。放电试验使用99.99%的高纯氩气和99.999%的高纯氮气作为工作气体,比例为1:1,放电气压为1.0 Pa,靶电压为800 V,脉冲频率为100 Hz,脉冲宽度为300 μs 。此时筒形溅射阴极内的辉光稳定且强烈,呈明亮的蓝色,表明等离子体密度很高,如图1b所示。在此基础上,使用自主开发的高精度等离子体发射光谱仪^[10]对筒形溅射阴极内的不同位置的 N^+ 、 Ar^+ 和 Cr^+ 三种离子特征光谱强度进行测试。共选取5条测试线,相邻两条之间间隔1.5 cm,其中测试线1对应筒形溅射阴极中央轴,测试线5代表筒形溅射阴极靶面。利用筒内Ar/N₂/Cr的HiPIMS放电体系制备一系列Cr_xN涂层,将基片(1×1 cm²)放置于z=10 cm处,控制基

片中心到中央轴的距离为 $r=0$ 、1.5 cm、3.0 cm、4.5 cm、6.0 cm、7.5 cm和9.0 cm,最后利用能谱仪(EDS, X-Max20, 英国)对涂层中Cr和N元素含量的变化趋势进行定性的分析^[21-22]。

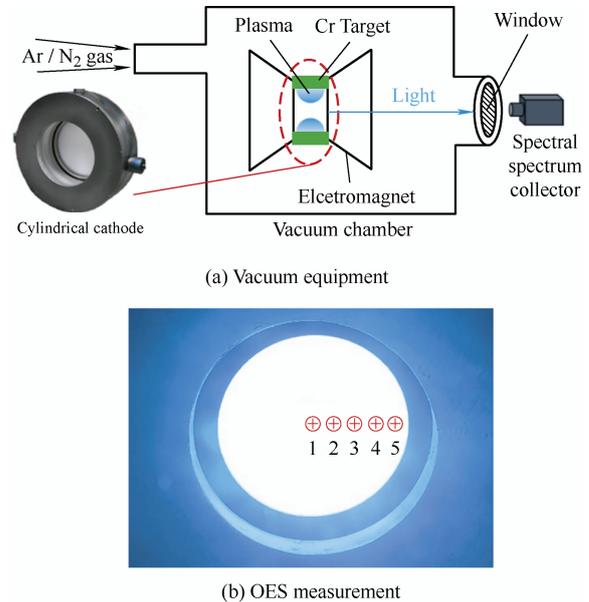


图4 真空设备和光谱测试示意图

Fig. 4 Schematic diagram of vacuum equipment and OES measurement

2.2 试验结果与讨论

为了对仿真结果进行验证,利用高精度光谱对Ar/N₂/Cr的HiPIMS放电体系中的 Cr^+ (523.7 nm), Ar^+ (410.4 nm)和 N^+ (399.5 nm)的特征光谱进行测试,得到一个脉冲时间内不同位置的特征光谱强度变化趋势,以此定性表征离子密度的空间分布,如图5所示。可见不同离子的特征光谱强度分布及其变化趋势不同,表明离子空间分布不均匀,进一步验证不同离子的输运特性之间存在明显差异。为了方便比较,对三种离子的特征光谱强度取平均值,同时对其在 $r=0$ 、1.5 cm、3.0 cm、4.5 cm和6.0 cm处(分别代表光谱试验中的测试线1、2、3、4和5)的仿真概率密度分布进行积分,得到的结果如图6所示。需要说明的是,在光谱测试过程中,光谱仪紧靠观察窗,而观察窗距离电磁线圈边缘不足2 cm,在此空间内,等离子体密度非常低,因此输出距离差异的影响可忽略不计。可见,由试验测得的特征光谱平均强度的空间变化趋势与仿真计算出离子概率密度积分的空间变化趋势基本吻合,初步证明理论分析的准确性。不同离子特

征光谱强度的演变趋势不同, 说明离子浓度空间分布存在差异。其中, Cr^+ 的光谱强度峰值出现在中央轴上 ($r=0\text{ cm}$), 并且在 $r=1.5\text{ cm}$ 时迅速下降至最低, 表明 Cr^+ 集中在中央轴附近, 其聚焦效果最好; 而 N^+ 的光谱强度在 $r=1.5\sim 4.5\text{ cm}$ 的区间呈现出近似平台的分布, 峰值位于 $r=4.5\text{ cm}$, 表明 N^+ 的聚焦效果最差, 与仿真的计算结果一致。

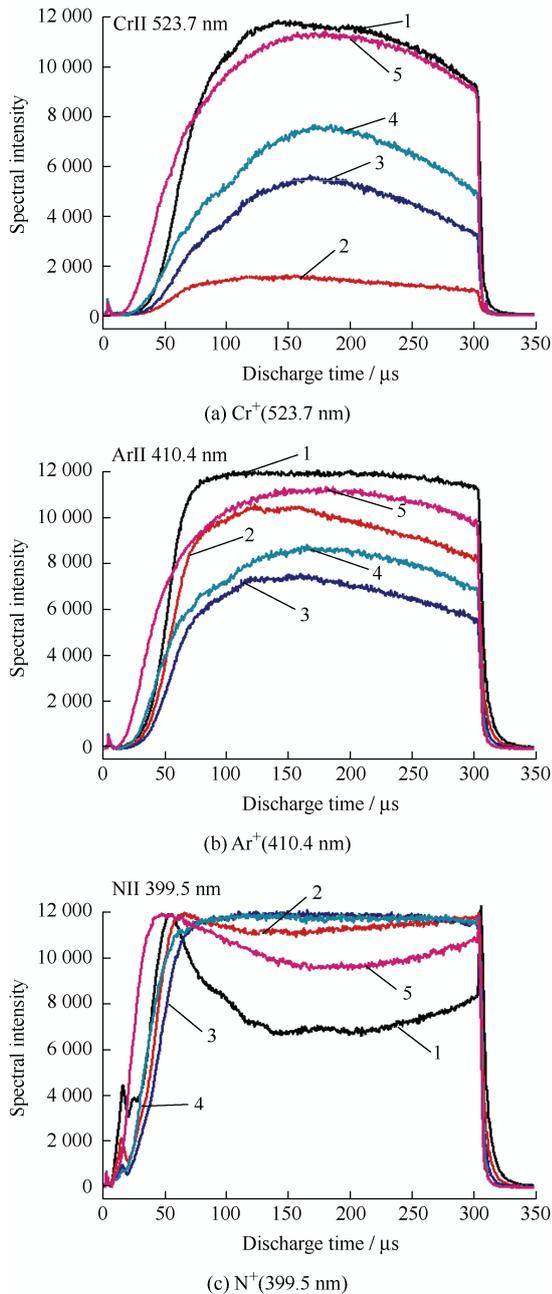


图 5 高精度光谱测出的一个 HiPIMS 脉冲时间内不同位置的 Cr^+ (523.7 nm), Ar^+ (410.4 nm) 和 N^+ (399.5 nm) 的特征光谱

Fig. 5 Characteristic spectrum of Cr^+ (523.7 nm), Ar^+ (410.4 nm) and N^+ (399.5 nm) at different positions in a pulse detected by OES

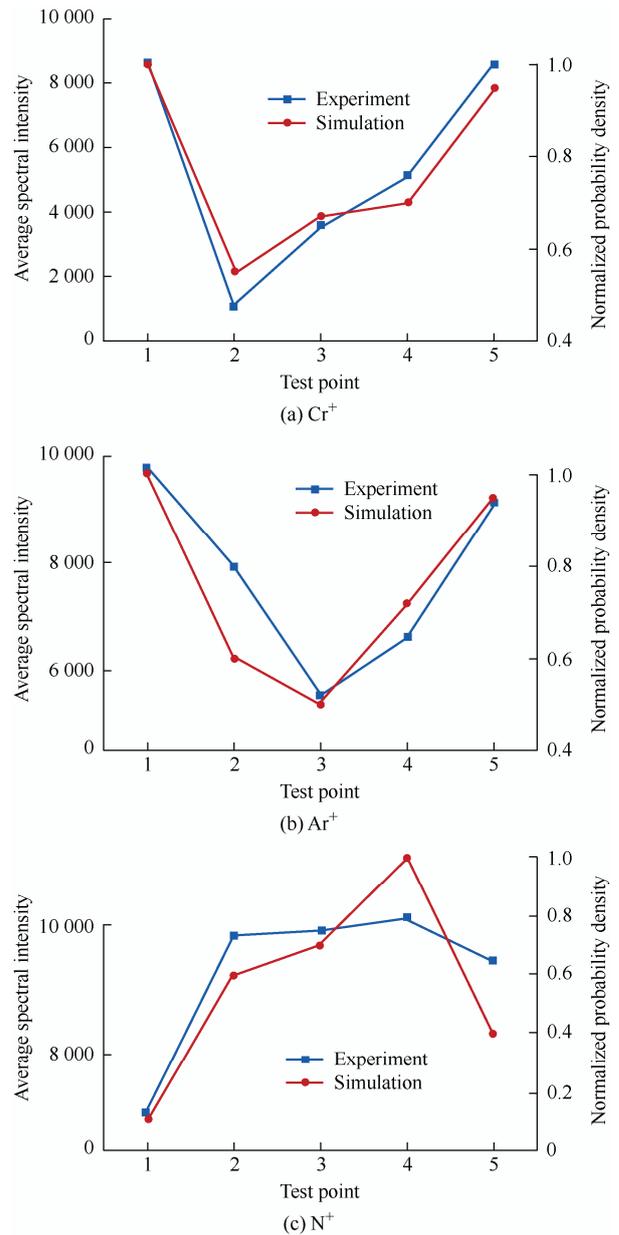


图 6 平均光谱强度与离子概率密度随空间位置的变化趋势
Fig. 6 Spatial evolution of the average spectral intensity and the ionic spectral intensity

图 7 所示为 EDS 定性检测出的不同沉积位置制备的 Cr_xN 涂层中 Cr 元素和 N 元素含量的变化趋势。可见, 随着沉积位置到中央轴距离的增大, 涂层中的 Cr 元素含量逐渐下降, 同时 N 元素的含量逐渐上升。进一步求出 Cr/N 比, 见表 2, 可见涂层中的 Cr/N 比随 r 的增大而逐渐降低, 在 r 超过 6 cm 后逐渐趋于稳定, 进一步验证 Cr^+ 和 N^+ 的聚焦效果存在显著差异。由此可见, 利用筒内等离子体放电中不同元素空间分布的差异, 可以一次性在不同的沉积位置同时制备出成分不同的涂层, 也可以通过筛选沉积位置实现涂层成分的精确控制。

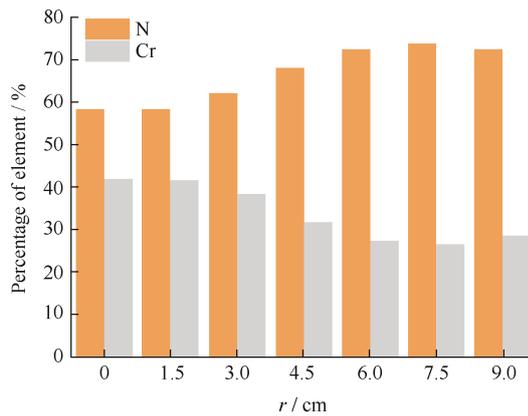


图7 不同沉积位置Cr_xN涂层中Cr元素和N元素占比的EDS检测结果($z=10\text{ cm}$)

Fig. 7 Proportion of Cr and N in the Cr_xN coatings prepared at different positions measured by EDS ($z=10\text{ cm}$)

表2 不同 r 值下的Cr/N比

Table 2 Cr/N ratio under different r

Position r/cm	0	1.5	3.0	4.5	6.0	7.5	9.0
Cr/N	0.72	0.71	0.62	0.46	0.38	0.36	0.38

3 结论

(1) 电磁场中等离子体体系内不同组分的输运特性由其质量、能量以及反应过程决定。

(2) 质量大、离子能量高的金属离子 Cr^+ 的输运行为受磁场影响较小, 不易发生散射, 更倾向于在浓差作用下扩散, 输出范围最窄。

(3) 质量小、离子能量低的气体离子 N^+ 的输运行为受磁场影响较大, 容易发生散射, 更倾向于沿磁感线运动, 输出范围最宽。

(4) 基于 Cr^+ 和 N^+ 离子的输运特性差异, 能够实现一次性制备多种不同Cr/N比的CrN涂层。

可以预测, 利用筒内等离子体放电体系中不同元素空间分布的差异, 可实现多种成分的一次性制备或同一成分的可控制备。

参 考 文 献

- [1] KOUZNETSOV V, MACÁK K, SCHNEIDER J M, et al. A novel pulsed magnetron sputter technique utilizing very high target power densities[J]. Surface and Coatings Technology, 1999, 122(2): 290-293.
- [2] GUDMUNDSSON J T, SIGURJONSSON P, LARSSON P, et al. On the electron energy in the high power impulse magnetron sputtering discharge[J]. Journal of Applied Physics, 2009, 105(12): 123302.
- [3] EHIASARIAN A P, HOVSEPIAN P E, HULTMAN L, et al. Comparison of microstructure and mechanical properties of chromium nitride-based coatings deposited by high power impulse magnetron sputtering and by the combined steered cathodic arc/unbalanced magnetron technique[J]. Thin Solid Films, 2004, 457(2): 270-277.
- [4] EHIASARIAN A P, WEN J G, PETROV I. Interface microstructure engineering by high power impulse magnetron sputtering for the enhancement of adhesion[J]. Journal of Applied Physics, 2007, 101(5): 054301.
- [5] ALAMI J, PERSSON P O Å, MUSIC D, et al. Ion-assisted physical vapor deposition for enhanced film properties on nonflat surfaces[J]. Journal of Vacuum Science & Technology A, 2005, 23(2): 278-280.
- [6] ANDERS A. Discharge physics of high power impulse magnetron sputtering[J]. Surface and Coatings Technology, 2011, 205: S1-S9.
- [7] SAMUELSSON M, LUNDIN D, JENSEN J, et al. On the film density using high power impulse magnetron sputtering[J]. Surface and Coatings Technology, 2010, 205(2): 591-596.
- [8] 肖舒, 吴忠振, 崔岁寒, 等. 筒形高功率脉冲磁控溅射源的开发与放电特性[J]. 物理学报, 2016, 65(18): 185202.
XIAO Shu, WU Zhongzhen, CUI Suihan, et al. Cylindrical high power impulse magnetron sputtering source and its discharge characteristics[J]. Acta Physica Sinica, 2016, 65(18): 185202. (in Chinese)
- [9] CUI S, WU Z, LIN H, et al. Hollow cathode effect modified time-dependent global model and high-power impulse magnetron sputtering discharge and transport in cylindrical cathode[J]. Journal of Applied Physics, 2019, 125(6): 063302.
- [10] CUI S, WU Z, XIAO S, et al. Nano-second temporal particle behavior in high-power impulse magnetron sputtering discharge in a cylindrical cathode[J]. Journal of Applied Physics, 2020, 127(2): 023301.
- [11] 李体军, 崔岁寒, 刘亮亮, 等. 筒形溅射阴极的磁场优化及其高功率放电特性研究[J]. 物理学报, 2021, 70(4): 045202.
LI Tijun, CUI Suihan, LIU Liangliang, et al. Magnetic field optimization and high-power discharge characteristics of cylindrical sputtering cathode[J]. Acta Physica Sinica, 2021, 70(4): 045202. (in Chinese)
- [12] HORWAT D, ANDERS A. Compression and strong rarefaction in high power impulse magnetron sputtering

- discharges[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108(12): 123306.
- [13] EHIASARIAN A P, ANDERSSON J, ANDERS A. Distance-dependent plasma composition and ion energy in high power impulse magnetron sputtering[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2010, 43(27): 275204.
- [14] LENIS J A, GÓMEZ M A, BOLÍVAR F J. Effect of deposition temperature and target-substrate distance on the structure, phases, mechanical and tribological properties of multi-layer HA-Ag coatings obtained by RF magnetron sputtering[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2019, 378(25): 124936.
- [15] BULTINCK E, BOGAERTS A. Particle-in-cell / Monte Carlo collisions treatment of an Ar/O₂ magnetron discharge used for the reactive sputter deposition of TiO_x films[J]. *New Journal of Physics*, 2009, 11(10): 103010.
- [16] BULTINCK E, MAHIEU S, DEPLA D, BOGAERTS A. Reactive sputter deposition of TiN_x films, simulated with a particle-in-cell / Monte Carlo collisions model[J]. *New Journal of Physics*, 2009, 11(2): 023039.
- [17] 崔岁寒, 吴忠振, 肖舒, 等. 外扩型电磁场控制筒形阴极内等离子体放电输运特性的仿真研究[J]. *物理学报*, 2019, 68(19): 195204.
- CUI Suihan, WU Zhongzhen, XIAO Shu, et al. Simulation study on plasma discharge and transport in cylindrical cathode controlled by expanding electromagnetic field[J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(19): 195204. (in Chinese)
- [18] DEPLA D, LEROY W P. Magnetron sputter deposition as visualized by Monte Carlo modeling[J]. *Thin Solid Films*, 2012, 520(20): 6337-6354.
- [19] ZIEGLER J F, ZIEGLER M D, BIRSACK J P. SRIM—the stopping and range of ions in matter[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2010, 268(11-12): 1818-1823.
- [20] 段伟赞. 高功率复合脉冲磁控溅射放电特性及氮化物薄膜制备[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2010.
- DUAN Weizan. Discharge characteristics of hybrid high power complex pulse magnetron sputtering and preparation of nitride films[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2010. (in Chinese)
- [21] SIRIPROM W, CHANANONNAWATHORN C, KONGSRIPAPAN S, et al. Preparation and characterization of CrN thin film by DC reactive magnetron sputtering[J]. *Materials Today*, 2018, 5: 15224-15227.
- [22] ZOU C, ZHANG J, XIE W, et al. Crn films deposited by middle frequency magnetron sputtering[J]. *Advanced Materials Research*, 2011, 189-193: 901-905.
-
- 作者简介: 崔岁寒, 男, 1989 年出生, 特聘研究员。主要研究方向为等离子体放电物理机制及仿真方法。
E-mail: cuish@pku.edu.cn
- 吴忠振 (通信作者), 男, 1984 年出生, 副教授, 博士研究生导师。主要研究方向为等离子体涂层与薄膜材料制备与调控。
E-mail: wuzz@pkusz.edu.cn