

## 制备光学金刚石膜的微波谐振腔设计及优化

李晓静<sup>1</sup>, 郑子云<sup>1</sup>, 史戈平<sup>2</sup>, 高永亮<sup>1</sup>

(1. 中国兵器科学研究院宁波分院, 浙江 宁波 315103;

2. 烟台万隆真空冶金股份有限公司, 山东 烟台 264006)

**摘要:** 设计了两种具有不同结构的用于制备光学金刚石膜材料的新型微波谐振腔, 第一种山字形剖面的重入式谐振腔, 具有能提供足够大的微波谐振空间, 激发出高密度等离子体的优点, 对其改进后, 沉积基台倒置, 减少杂质, 有助于提高膜的质量。在第二种谐振腔结构优化过程中发现, 微波传输结构部分设计过渡锥台比直接连接时, 沉积台上方可获得更强的电场强度, 有利于提高沉积速率。对气体供给方式及流速进行了优化, 提出了两种工作气体供给模式, 模式 I 从中心孔进入, 模式 II 从环状孔进入。结果表明: 模式 I 有利形成均匀膜层, 最佳气体流速范围为 5~10 m/s。设计的微波谐振腔可应用于高品质光学金刚石膜的制备。

**关键词:** 微波; 谐振腔; 结构设计; 优化

**中图分类号:** TN108.3      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.3788/IRLA201948.S216001

## Design and optimization of microwave cavity for preparation of optical diamond film

Li Xiaojing<sup>1</sup>, Zheng Ziyun<sup>1</sup>, Shi Geping<sup>2</sup>, Gao Yongliang<sup>1</sup>

(1. Inner Mongolia Metal Material Research Institute, Ningbo 315103, China;

2. Yantai Wanlong Vacuum Metallurgy Co., LTD, Yantai 264006, China)

**Abstract:** Two microwave resonant cavity with different structures for preparing optical diamond film materials were designed. The Hill shape reentrant cavity can provide enough space for microwave to resonate inside, helping to excite high-density plasma. The improved structure with tilted up substrate holde can obtain high quality film with less impurity. In the optimization process of the second design, it was found that the transition structure with cone can obtain stronger electric field intensity and higher deposition rate than the direct connection style. Gas supply ways and flow rate were optimized, two kinds of gas supply modes were proposed. Mode I was that gas enter from one center hole on the top of the cavity, and mode II was a circular path on the top. The results show that the air inlet way with mode I is favorable for the deposition of uniform film, and the optimal gas flow rate range is 5–10 m/s. The designed microwave cavity can be applied to the preparation of high quality optical diamond film.

**Key words:** microwave; resonant cavity; structure design; optimization

收稿日期: 2019-04-10; 修订日期: 2019-05-20

基金项目: 内蒙古自然科学基金(2017MS0539)

作者简介: 李晓静(1979-), 女, 研究员, 博士, 主要从事材料表面及等离子技术、光学材料超精密加工工艺方面的研究。

Email: happybuaa@126.com

## 0 引言

金刚石是极其优良的光学材料,在诸多固体薄膜里面,它拥有最宽的透射光谱带,具有极宽的光谱透过范围和极低的吸收系数。除了在 3~5 μm 的中红外波段因声子振动存在吸收峰之外,金刚石在从远红外到真空紫外的整个电磁波段都具有良好的透过性。由于金刚石同时还具有极高的硬度、强度和极低的热膨胀系数,再加上其极好的力学、化学惰性、热学性能和优良的抗辐射损伤性,因而金刚石膜是一种极佳的红外光学材料<sup>[1-3]</sup>。光学金刚石膜红外光透过率达到 71%,具有很低的红外光吸收系数和极高的光畸变品质因子。

这些性质都使得金刚石成为最为理想的高功率红外激光窗口和整流罩材料,红外热成像装置的窗口,用其做成的器件能够很好地适应高能激光、热冲击、化学腐蚀等恶劣环境<sup>[4]</sup>。此外金刚石由碳元素构成,具有很低的原子序数,因此对 X 射线的吸收性很差,也使得金刚石成为理想的 X-ray 窗口材料<sup>[5]</sup>,航天飞机与高马赫数导弹上面的整流罩,飞机上激光制导的窗口等。金刚石膜光学涂层的应用前景同样也非常引人注目,其典型的应用实例包括各种光学器件的保护涂层等。

到目前为止,在世界范围内已发展出了一系列的借助等离子体的金刚石膜沉积方法,其中最主要的有热丝法、直流电弧等离子体喷射法以及微波等离子体化学气相沉积法(MPCVD)等,国内外相关学者也开展了大量研究工作<sup>[6-8]</sup>。在这些金刚石膜的主要沉积方法之中,MPCVD 法的特点是其产生的等离子体的密度较高、金刚石膜沉积过程的控制性好、无放电电极的污染。因此,MPCVD 法一直是国际上被用于高品质光学级金刚石膜制备的首选方法。为满足光学金刚石的工业需求,更多的关注重点 CVD 产业化的研究<sup>[9]</sup>,近几年不断研究开发新型的微波等离子沉积装置<sup>[10-12]</sup>。但另一方面,MPCVD 法也具有金刚石膜的沉积速率相对较低的缺点。

文中针对目前多数 MPCVD 装置沉积速率低,微波输入功率及沉积膜质量有待进一步提高的问题,提出并模拟了新型的微波谐振腔的设计,并对其部分结构及气体供给方式进行了优化。这对于发展

微波等离子体化学气相沉积技术,获得高品质光学金刚石膜具有十分重要的意义。

## 1 研究方法

文中主要采用数值模拟的研究方法,结合商用软件及计算机自编程语言,其中 Ansoft-HFSS 用于进行等离子反应腔初步结构设计与优化,Matlab 自编程语言用于计算反应腔内电磁场分布,流体计算软件 Fluent 用于流体,文中主要是对工作气体分布的模拟。具体如下:

Ansoft -HFSS (High Frequency Structure Simulator)模拟软件是一个基于有限元法(FEM)的电磁仿真软件, HFSS 将整个的被模拟区域划分为多个很小的被称之为“单元”的子区域<sup>[13]</sup>。软件将描述微波电磁场边界问题的麦克斯韦(Maxwell)方程应用于这些子区域中,得到一个描述了整个模拟区域中电磁场值的稀疏矩阵。然后,应用迭代法对上述的矩阵求解后,即可得出整个模拟区域中各个单元中电磁场的值,从而也就得出了整个模拟区域中微波电磁场的分布。模拟流程图如图 1 所示。

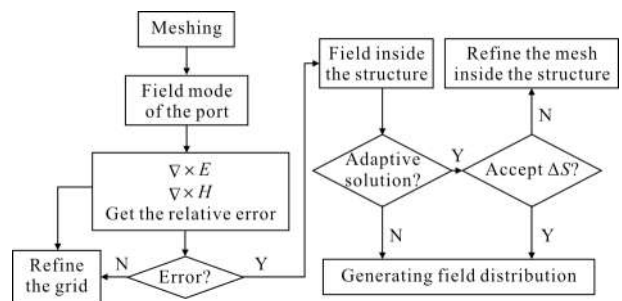


图 1 使用 HFSS 软件对微波谐振腔内电场分布模拟的流程图

Fig.1 Flow chart of electric field distribution simulation in microwave cavity using HFSS software

文中对微波电磁场进行模拟时,采用了 MATLAB 语言来编写模拟程序,结合时域有限差分法(FDTD)。采用 MATLAB 编程和 FDTD 方法进行模拟的流程图如图 2 所示。

模拟电磁场,首先定义微波谐振频率,传输速度等常数,确定时间空间步长,给定微波源输入功率,设定收敛条件后开始进行循环计算,开始电磁场迭代运算,循环一定周期后,判定模拟结果是否收敛,否则就可以调整时间和空间步长,重新开始计算<sup>[14]</sup>。

该研究微波输入频率为 2.45 GHz。

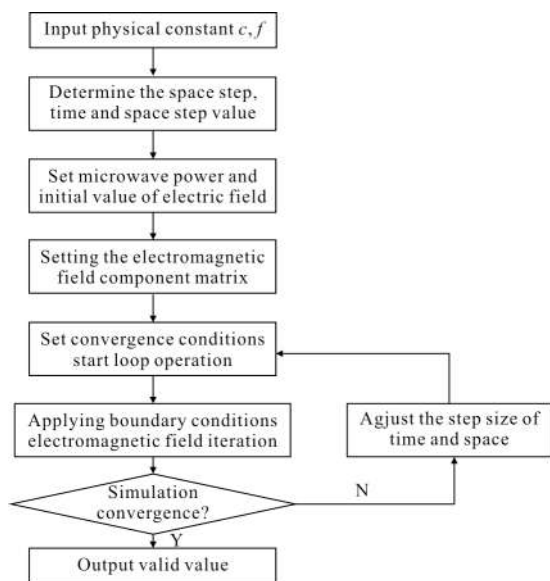


图 2 MATLAB 编程结合 FDTD 方法的模拟流程

Fig.2 Simulation process of MATLAB combined with FDTD method

利用的流体力学通用计算软件 Fluent 模拟工作气体流速及在腔体内的分布情况, 采用不同的离散格式和数值方法, 在特定的领域内使计算速度、稳定性和精度等方面达到最佳组合<sup>[15]</sup>。

## 2 微波谐振腔结构设计及优化

### 2.1 微波谐振腔结构设计

在各种 MPCVD 金刚石膜沉积装置中, 最具有代表性的是传统圆柱谐振腔式和椭球谐振腔式的 MPCVD 装置。圆柱谐振腔装置的特点是构造简单、频率易于调节, 但其缺点则是微波能量不集中。椭球谐振腔具有较为复杂的外形, 因而它对微波能量形成了更强的聚焦作用。该研究将结合两者的优点, 进行设计。

图 3 中的谐振腔一方面加大了自身的直径, 另一方面在原来石英窗的位置处增加了对微波起反射作用的谐振腔壁, 它将迫使微波能量的传输路径变为曲面, 即如图 3 中箭头所指出的那样。在谐振腔的下部, 以曲面传输的微波能量将被重新聚集起来, 形成一个电场的极大值区域, 而这恰恰是椭球谐振腔式装置的最大优点。另一方面, 由于图 3 所示的谐振腔的外形较为简单, 因而将很容易通过对其轴向长

度的调节, 达到对谐振腔的谐振频率进行调节的目的。由于在图 3 中, 金属边界延伸到了谐振腔的内部, 因而这种微波谐振腔可被称之为重入式的谐振腔。

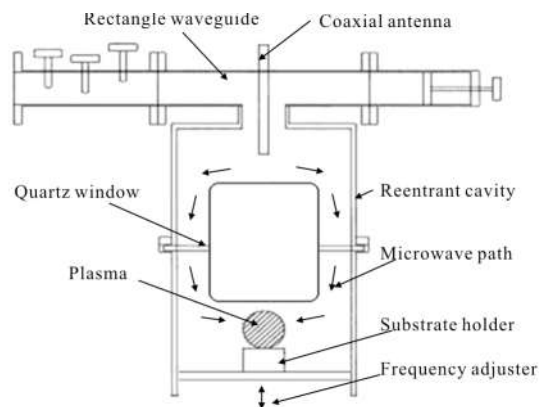


图 3 重入式谐振腔 MPCVD 装置的示意图

Fig.3 Schematic diagram of a reentrant cavity MPCVD device

在反复尝试的基础上, 设计了一种如图 4 所示的山字形剖面的重入式谐振腔。在这种谐振腔之中, 谐振腔的外形由两个不同直径的圆柱体所构成。这样做的好处在于可以依靠调节圆柱体的高度对谐振频率进行适当的调节。同轴天线被换到了谐振腔的底部, 它的主要作用仍是使微波能被耦合进入谐振腔内形成驻波, 以便在沉积台的上方形成一强的电场区域。介质窗口采用了的环状设计, 更容易加工制造。

在这一谐振腔中, 同轴天线与腔体内的金属谐振结构直接相连, 起到支撑作用。并且, 由于同轴天线还可以被设计成中空的, 从而可以利用其对沉积台进行水冷。整个谐振腔的半径较大, 这就可以提供

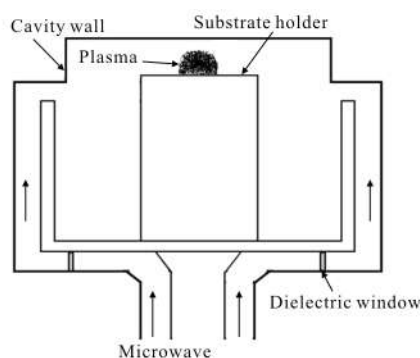


图 4 山字形的重入式谐振腔结构的示意图

Fig.4 Schematic diagram of Hill shape reentrant cavity

足够的空间使微波在其内部形成谐振，有助于激发出高密度的等离子体。谐振腔内的金属壁设计成了山字形的截面形状，其作用仍然是实现对于微波传播路径的约束。

对此种山字形剖面的重入式谐振腔式结构进行初步优化之后，获得了如图 5 所示的谐振腔内的电场分布图和电场矢量图。在模拟时，假设了微波的输入功率为 1 W。

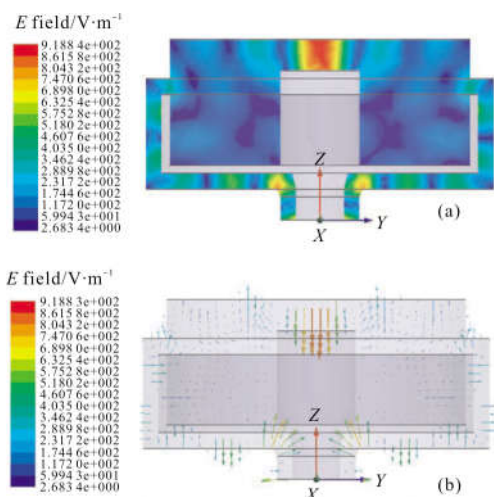


图 5 山字形重入式谐振腔内(a)电场强度分布及(b)电场矢量图  
Fig.5 Distribution of (a) electric field intensity and (b) the electric field vector in Hill shape reentrant cavity

从图 5(a)可以看出，在谐振腔内沉积台的上方存在一唯一的强电场区域，其强度是谐振腔内其它区域电场强度的四倍以上。这将有助于在沉积台上方激发出高密度的等离子体。从图 5(b) 的谐振腔内电场矢量图也可以看出，传入微波谐振腔内的微波能量将具有轴对称的、曲面方式的传输途径。

在模拟的过程中还发现，如果降低图 5 所示的谐振腔内沉积台的高度以及其半径，还可得到另外一种的重入式谐振腔式结构，其谐振腔内的电场分布和电场矢量图如图 6 (a)、(b)所示。与前一种谐振腔时的情况相同，在此谐振腔内也会形成唯一的强电场区域，但它出现在了谐振腔的顶端处。显然，如果想使金刚石膜的沉积位置处于沉积室的顶端时，即可采用这种设计。在此种情况下，CVD 过程中产生的杂质颗粒将不易于落到沉积表面上，因而这种设计将有助于提高所沉积的金刚石

膜的质量。

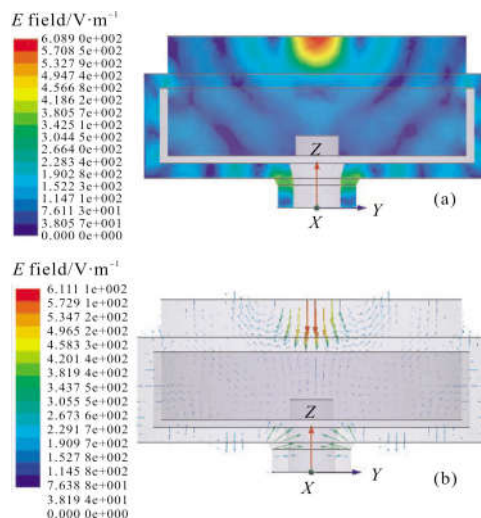


图 6 改进后山字形重入式谐振腔内 (a) 电场强度分布及 (b) 电场矢量图

Fig.6 Distribution of (a) electric field and (b) the electric field vector in improved Hill shape reentrant cavity

## 2.2 结构优化

同轴线内导体与沉积台下部的连接方式也需要加以考虑。在谐振腔的其它结构不变的情况下，改变同轴线内导体与沉积台的连接方式，会对谐振腔内电场的强度产生很大的影响。图 7 为模拟得到的同轴线与沉积台直接连接和两者之间采用过渡锥台连接的两种方式时的电场分布图。

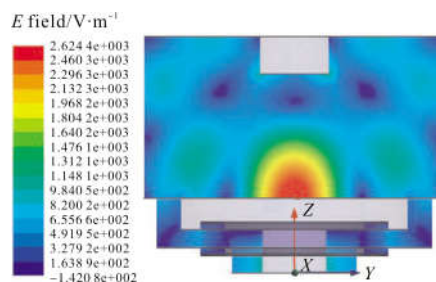


图 7 圆柱同轴线内导体与沉积台直接连接的电场分布  
Fig.7 Electric field distribution in cavity with cylinder coaxial antenna

在图 7 的无过渡锥台的设计中，谐振腔体内最大的电场强度  $E_{max} = 2.6244 \times 10^3$  V/m，而在图 8 的有过渡锥台的设计中， $E_{max} = 3.1880 \times 10^3$  V/m。通过比较可以看出，存在过渡锥台比直接连接时沉积台上方可获得更强的电场强度，即通过同轴线耦合进入谐振腔内的微波能量更高。经优化后，锥台的尺寸为：顶端半径 40 mm，

底端半径 25 mm, 锥台高度为 15 mm, 锥角为 45°。

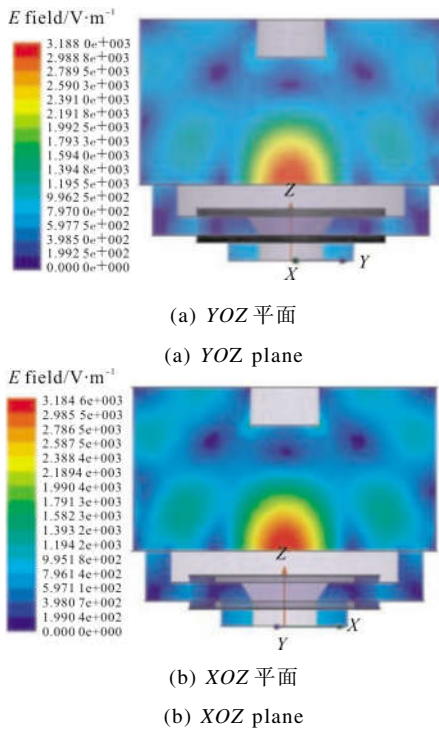


图 8 锥台连接结构天线的微波谐振腔不同剖面的电场分布图  
Fig.8 Electric field distribution of different sections of microwave resonator with cone-shaped antenna

在图 8 中,同时给出了在有过渡锥台时,谐振腔相互垂直的两个不同剖面上电场的分布图。它们表明,在相互垂直的 YOZ 和 XOZ 两个平面上,微波电场分布的对称性很好,在沉积台上方电场强度最强和较为均匀。在谐振腔内,输入的微波将形成驻波,其电场在径向的波瓣数为 2,在轴向的波瓣数为 1,即其对应的谐振腔内的微波谐振模式确为  $TM_{021}$ 。

从图 8 还可以看出,在谐振腔内只存在一处较强的电场区域,其位置紧贴沉积台上方。而且,此处的电场强度远远大于在其它区域中电场的数值,特别是微波窗口附近的电场强度较低。这样,在一定的微波功率和气压条件下,将只会在沉积台上方的电场最强处激发形成一等离子体球,而在谐振腔的其他空间处将没有次生的等离子体产生,尤其是在微波窗口附近没有次生的等离子体产生。这一点对于整个 MPCVD 装置的高功率运行是至关重要的。

以上设计的微波谐振腔由于具有圆柱形的外形,将易于实现对于谐振频率的调节。同时,这些 MPCVD 装置将可避免石英钟罩直接与等离子体接

触的问题,有助于显著提高装置的微波输入功率。显然,这些特点对于一种新型的 MPCVD 金刚石膜沉积装置将具有重要的意义。

### 2.3 工作气体供给路径及流速选择

金刚石膜沉积实验所用的原料气体经谐振腔的顶端被输入沉积室,气体的成分为大量的氢气和少量的甲烷。不同的气体供给方式,对沉积室内流动及分布有很大影响,从而影响等离子体状态,最终影响沉积薄膜的质量。

该研究采用两种气体供给方式:模式 I 是由沉积室顶端中心孔进入腔体内部(图 9(a));模式 II 是顶端圆形通道进入(图 9(b))。

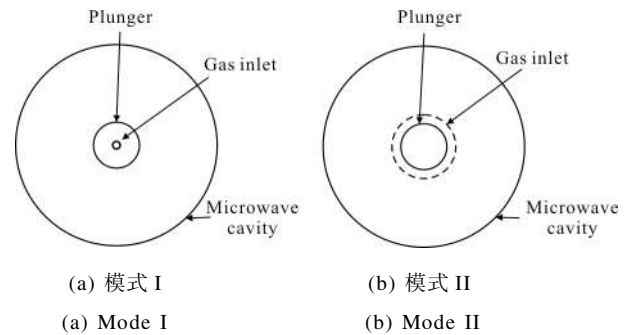
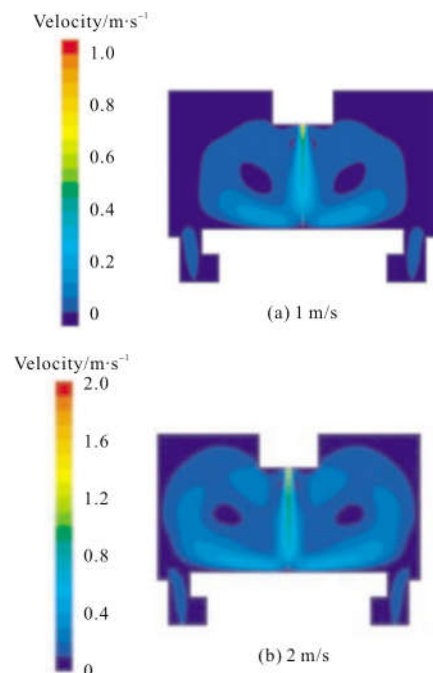


图 9 工作气体供给模式示意图  
Fig.9 Schematic diagram of working gas supply mode

在每一种供给方式中,使用 Fluent 软件模拟了气体流速范围,为 1~10 m/s。气体在沉积室内流动及分布情况,如图 10、11 所示。



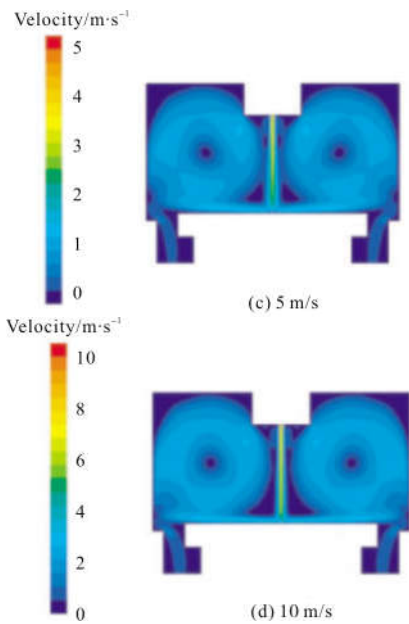


图 10 模式 I 气体流速对沉积室内气体分布的影响  
Fig.10 Effect of mode I gas velocity on gas distribution in deposition chamber

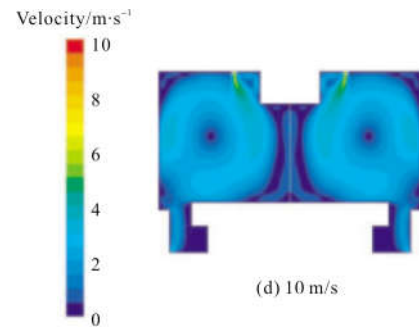
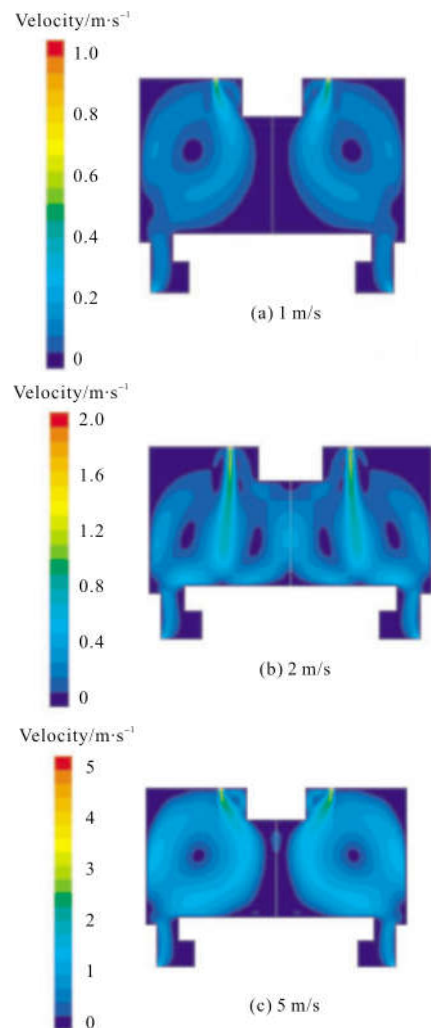


图 11 模式 II 气体流速对沉积室内气体分布的影响  
Fig.11 Effect of mode II gas velocity on gas distribution in deposition chamber

从图 11 可以看出,工作气体为氢气和甲烷的混合气体。采用第二种圆环通道进入方式时,即模式 II,气体在沉积室壁面边缘对流,后流出沉积室外,而在沉积台上方及中心处气体较为稀薄,当气体流速逐渐增加时,如图 11(b)为 2 m/s 时,在沉积台上方及中心处气体密度有所增加,但仍较为稀薄。当入口速率为 5~10 m/s 时,在沉积台上方气体又呈现减少的趋势,中心处几乎没有气体流过,这种状态则会导致此处无等离子激发,从而导致沉积薄膜较薄。

从图 10 可以看出,以模式 I 中间孔进入方式,气体射流恰好对准沉积台的中心位置,并且紧贴基台平面均匀扩散,之后在沉积室内对流。等离子激发后工作气体被消耗,部分气体由沉积室底端的出口排出。通过模拟结果对比,说明第二种进气方式有利于均匀薄膜的形成,是一种最佳方式。同时,除了选择最佳气体流动方式,还要选择合适的气体流速,不能过高或过低。

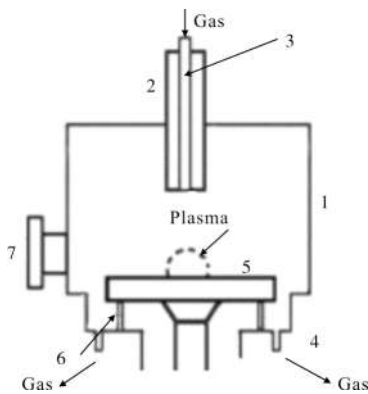
图 12 为设计后的微波谐振腔,是 MPCVD 装置最重要的组成部分。微波能量从波导以 TE<sub>10</sub> 模式传播后,经过环形器和三螺钉调配器,在经同轴天线模式转换器转换为 TM 模式后,将从石英窗口进入谐振腔式的沉积室,并在后者中激发出所需的微波场型以及在沉积台的上方形成一半球状的等离子体,图 12(a)的观察窗可以看到紫色的等离子体,沉积高品质金刚石膜。图 12(b)为选用气体模式 I 时的示意图,图中 1 表示金属微波腔;2 表示调节结构;3 表示气体入口通道;4 表示气体出口通道;5 表示沉积基台;6 表示介质窗口;7 表示观察窗口。工作气体主要是 H<sub>2</sub> 及 Ar,由微波谐振腔体顶端进入,基体下

方腔体底端流出。



(a) 实物图

(a) Picture of real product



(b) 气体工作模式示意图

(b) Schematic diagram of gas working mode

图 12 设计的微波谐振腔

Fig.12 Designed microwave cavity

采用上述设计的微波谐振腔体的 MPCVD 装置,开展实验研究,实验研究过程中其展现了在 10 kW 的高功率水平下运行的能力,实现快速沉积高品质并且均匀性较好的金刚石膜,制备的膜的微观表面形貌如图 13 所示,从微观表面形貌上看,实验沉积的金刚石晶粒的平均尺寸约 10 μm,各晶粒均呈现出完整的晶体学面,各晶面上无孪晶出现。

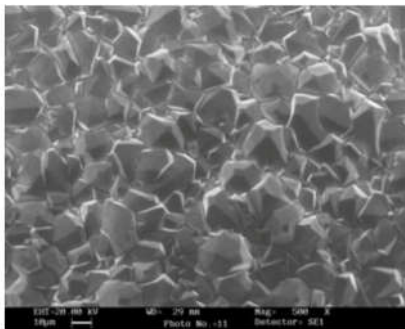


图 13 金刚石膜的微观表面形貌

Fig.13 Micro-structure topography of diamond film

### 3 结 论

该研究使用重入式谐振腔的概念,设计出不同结构的微波谐振腔,用于新型 MPCVD 装置的改进。这些腔体结构简单,便于加工制造,同时也具有椭球形谐振腔式装置微波聚焦能力的优点,有助于产生金刚石膜沉积所需要的高密度等离子体。在同轴传输转换部分优化过程中发现,存在过渡锥台比直接连接时沉积台上方可获得更强的电场强度,即通过优化结构的同轴线耦合进入谐振腔内的微波能量更高。选择合适的气体供给方式,及气体流速,有利于制备均匀薄膜,提高光学薄膜的品质。

#### 参考文献:

- [1] Li Yaolong, Li Jianming, Su Xiaoping, et al. Research trends and current status in infrared window and dome materials [J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2007, 36 (4): 877-883.
- [2] Dodson J M, Brandon J R, Dhillon H K, et al. Single crystal and polycrystalline CVD diamond for demanding optical applications [C]//Proc of SPIE, 2011, 8016: 80160L.
- [3] Blair D, Cleva F, Man C N. Optical absorption measurements in monocrystal-line sapphire at 1 pm[J]. *Optical Materials*, 1997, 8: 233-236.
- [4] Su Q F, Xia Y B, Wang L J. Optical and electrical properties of different oriented CVD diamond films[J]. *Applied Surface Science*, 2006, 252: 8239-8242.
- [5] Coe S E, Sussmann R S. Optical, thermal and mechanical properties of CVD diamond [J]. *Diamond and Related Materials*, 2000, 9: 1726-1729.
- [6] Yamada H, Chayahara A, Mokuno Y, et al. Modeling and numerical analyses of microwave plasmas for optimizations of a reactor design and its operating conditions [J]. *Diamond and Related Materials*, 2005, 14: 1776- 1779.
- [7] Yamada H, Chayahara A, Mokuno Y, et al. Numerical analysis of power absorption and gas pressure dependence of microwave plasma using a tractable plasma description[J]. *Diamond and Related Materials*, 2006, 15: 1395-1399.
- [8] Silva F, Hassouni K, Bonnin X, et al. Microwave engineering of plasma -assisted CVD reactors for

- diamond deposition [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2009, 21: 1–16.
- [9] Sun Q, Wang J H, Weng J, et al. Surface structure and electric properties of nitrogen incorporated NCD films [J]. *Vacuum*, 2017, 137: 155–162.
- [10] Weng J, Liu F, Xiong L W. Deposition of large area uniform diamond films by microwave plasma CVD [J]. *Vacuum*, 2018, 147: 134–142.
- [11] Li Y F, An X M, Liu X C, et al. A 915 MHz/75 kW cylindrical cavity type microwave plasma chemical vapor deposition reactor with a ladder-shaped circumferential antenna developed for growing large area diamond films [J]. *Diam Relat Mater*, 2017, 78: 67–72.
- [12] Su J, Li Y, Liu M D, et al. Revisiting the gas flow rate effect on diamond films deposition with a new dome-shaped cavity type microwave plasma CVD reactor [J]. *Diamond and Related Materials*, 2017, 73: 99–104.
- [13] Xie Yongjun, Wang Peng. The Foundation and Application of Ansoft-HFSS [M]. Xi'an: Xi'an University of Electronic Science and Technology Press, 2007. (in Chinese)
- [14] Ge Debiao, Yan Yubo. Electromagnetic Wave Finite Difference Time Domain Method [M]. 3rd ed. Xi'an: Xi'an University of Electronic Science and Technology Press, 2011. (in Chinese)
- [15] Han Zhanzhong, Wang Jiang, Lan Xiaoping. Examples and Applications of Fluent Fluid Engineering Simulation Calculation [M]. Beijing: Beijing Institute of Technology Press, 2004. (in Chinese)