

文章编号: 2095-4980(2018)03-0374-04

太赫兹行波管输能窗用复合金刚石膜的设计

李莉莉, 丁明清, 杜英华, 冯进军

(北京真空电子技术研究所 微波电真空器件国家级重点实验室, 北京 100015)

摘要:为解决现有多晶金刚石用于太赫兹(THz)真空电子器件输能窗存在慢性漏气风险的技术难题,介绍了一种高断裂强度、良好真空密封性能、低微波损耗的新型超薄复合多层金刚石膜的研制方法。该复合超薄金刚石膜采用微波等离子体化学气相沉积(MPCVD)技术,通过合理的结构设计和优化工艺,实现微米晶金刚石(MCD)和超纳米晶金刚石(UNCD)交替沉积的三明治结构。测量100 μm厚不同结构的复合膜断裂强度,是同样厚度的MCD的2~3倍。将研制的复合多层金刚石膜用于180 GHz和220 GHz太赫兹行波管输能窗,通过气密性检测,漏率 $\leq 1 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$ 。窗的冷测结果显示,180 GHz窗的 $S_{11} \leq -15 \text{ dB}$ (10 GHz带宽),220 GHz窗的 $S_{11} \leq -10 \text{ dB}$ (20 GHz带宽),均具有良好的射频(RF)性能,满足使用要求。为太赫兹行波管输能窗的研制提供了一种成本低、可靠性高的超薄金刚石膜的技术途径。

关键词:超纳米金刚石;微米金刚石;断裂强度;传输损耗

中图分类号: TN104

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA201803.0374

Design and fabrication of composite diamond window for terahertz TWT

LI Lili, DING Mingqing, DU Yinghua, FENG Jinjun

(National Key Laboratory of Science and Technology on Vacuum Electronics, Beijing Vacuum Electronics Research Institute, Beijing 100015, China)

Abstract: To overcome slow leaking problems of the Micro-Crystalline Diamond(MCD) window, a study on an extremely thin composite diamonds for the windows of the Terahertz(THz) wave Traveling Wave Tubes(TWTs) is presented. The composite diamond is prepared by Microwave Plasma Chemical Vapor Deposition(MPCVD) method. To reinforce the mechanical properties and air tightness, MCD is deposited incorporated with Ultra-Nano-Crystalline Diamond(UNCD). A 100 μm thick composite film is designed and fabricated. The fracture strengths of the composite films with thin layers of UNCD are 2~3 times higher than those of the MCD films. The results of the leak test show the maximum leak rate of the windows is less than $1 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$. 180 GHz and 220 GHz TWT composite diamonds windows are assembled. Results of the Radio Frequency(RF) tests of the two windows show that $S_{11} \leq -15 \text{ dB}$ (in range of 10 GHz) and $S_{11} \leq -10 \text{ dB}$ (in range of 20 GHz) respectively, indicating a good RF performance. This work provides a novel approach for the fabrication of extremely thin diamond windows for THz TWTs.

Keywords: Ultra-Nano-Crystalline Diamond; Micro-Crystalline Diamond; fracture strength; transmission loss

电真空器件工作频率进入太赫兹(THz)频段,零件特征尺寸变得非常小,这就给零件加工带来了挑战。对太赫兹行波管而言,根据模拟220 GHz的行波管针对最小反射设计的输能窗厚度仅为100 μm。在如此薄的厚度下,窗片必须拥有足够的真空密封性和断裂强度,已经达到了绝大多数材料的使用极限。而且作为输能窗的材料还必须满足良好的匹配性能和较小的微波损耗,这使得该问题变得更加棘手。目前,国际上大都采用人工合成金刚石单晶作为太赫兹器件的输能窗。例如, Kimura等在220 GHz行波管中采用了76 μm厚、直径1.4 mm的单晶金刚石(Single-Crystal Diamond, SCD)输能窗^[1]。Northrop的Tueck等同样在0.85 THz和1.03 THz行波管中使用单晶金刚石^[2-3]。而国内太赫兹行波管输能窗的研究尚处于空白状态。当前将单晶金刚石用作太赫兹输能窗材料也

收稿日期: 2016-09-26; 修回日期: 2017-10-13

基金项目: 国家重点基础研究发展计划("973"计划)资助项目(2013CB933602); 装备预先研究资助项目(31512010502-3)

存在如下问题: a) 目前金刚石单晶大都由高温高压法制造, 面积极小($\leq 10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$), 价格昂贵; b) 几十微米厚金刚石单晶的研磨和抛光非常困难, 过程中产生的隐形裂纹对窗的可靠性带来很大隐患; c) 国内单晶金刚石的研制水平较国际上还有很大差距。因此采用单晶金刚石用作 THz 器件输能窗材料也不是最好的解决方案。为了加快太赫兹电真空器件的国产化进程, 迫切需要自行研制一种低微波损耗、高结构强度和密封性能的新材料来解决这一难题。

课题组前期制备了微米晶金刚石(MCD), 晶粒的尺度在几十甚至上百微米。微米晶的晶粒越大, 晶界比例越小, 则其光学和微波性能越好。但是, 由于不同取向的多晶晶粒杂乱无章地堆在一起, 晶粒较大的微米晶可能带来机械强度和气密性的下降, 特别是当晶粒尺寸接近金刚石膜的厚度时, 这一现象更为严重, 表现为行波管的慢性漏气失效。近十几年来, 元素六投入很大精力研究超纳米晶金刚石(UNCD), 并开发了一系列产品和应用^[4]。超纳米晶金刚石是指晶粒尺寸为 $3 \sim 10 \text{ nm}$ 的金刚石, 由于尺寸细小, 结构致密, 其具有优异的机械强度和气密性^[5-6]。两种形式的金刚石材料各有特点, 可相互补充。本文从该角度出发, 结合两种金刚石膜的优点, 研制了一种新型超薄复合多层金刚石膜。通过优化膜的结构设计, 使超薄复合膜的断裂强度和气密性获得较大提高, 同时, 该膜还可以省去研磨和抛光等工序, 直接用作输能窗材料, 极大提高了窗的可靠性和生产效率。

1 实验方法

1.1 复合膜的生长工艺

新型超薄复合多层金刚石膜的制备在 6 kW , 2.45 GHz 的 Diamo Tek 700 微波等离子体化学气相沉积(MPCVD) 装置中进行。基片采用 n 型(100)硅片。在生长之前, 使用纳米金刚石粉进行机械抛光形核, 形核密度控制在 $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。MCD 的生长工艺之前已有详细报道^[7-8], 在富氢的气氛中生长, $\text{H}_2:\text{CH}_4=1:100$, 微波吸收功率 2 kW , 沉积时衬底温度 $900 \text{ }^\circ\text{C}$ 。UNCD 的生长在贫氢的条件下进行, $\text{CH}_4/\text{H}_2/\text{Ar}=1:1:100$, 微波吸收功率 1.5 kW , 沉积时衬底温度 $700 \text{ }^\circ\text{C}$ 。MCD 和 UNCD 的生长速率均在 $\sim 1 \mu\text{m/hr}$ 。根据结构设计, 重复上述 2 种工艺至膜最终厚度。

1.2 复合金刚石膜的结构设计

考虑到金刚石膜的断裂通常从表面较大晶粒处开始, 因此设计时在 MCD 的两面生长几微米的 UNCD 膜, 形成三明治结构以提高其断裂强度。为了系统研究复合膜结构, 特别是 UNCD 的膜厚对机械性能的影响, 设计了 4 种不同的结构, 如图 1 所示。图 1(a) 的结构被用来研究 UNCD 的膜厚对断裂强度和热导率的影响, 其研究结果在图 4 给出。图 1(b)和(c)的结构用作比对实验, 以观察表面粗糙度和气密性的差异。第 4 种结构(d)是实际用于制作 180 GHz 行波管窗片。该结构由 2 层 MCD 和 3 层 UNCD 构成, 膜层的厚度(从下到上)分别为 $2.5 \mu\text{m}$ UNCD, $45 \mu\text{m}$ MCD, $2.5 \mu\text{m}$ UNCD, $45 \mu\text{m}$ MCD 和 $5 \mu\text{m}$ UNCD, 总厚度为 $100 \mu\text{m}$ 。该结构的特点是在复合膜中间增加了一层 UNCD, 目的是降低 MCD 最终的晶粒尺度, 从而减小表面的粗糙度, 省去研磨和抛光工艺。图 2 是用上述方法制备的 220 GHz 和 180 GHz 行波管输能窗片, 图 3 是窗片用复合金刚石膜的断面图, 这种紧密堆积的结构正是窗片高机械强度和气密性的原因。

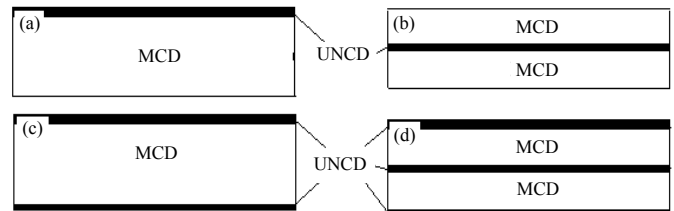


Fig.1 Schematic structure of four types of designed composite films
图 1 复合膜的不同设计结构

考虑到金刚石膜的断裂通常从表面较大晶粒处开始, 因此设计时在 MCD 的两面生长几微米的 UNCD 膜, 形成三明治结构以提高其断裂强度。为了系统研究复合膜结构, 特别是 UNCD 的膜厚对机械性能的影响, 设计了 4 种不同的结构, 如图 1 所示。图 1(a) 的结构被用来研究 UNCD 的膜厚对断裂强度和热导率的影响, 其研究结果在图 4 给出。图 1(b)和(c)的结构用作比对实验, 以观察表面粗糙度和气密性的差异。第 4 种结构(d)是实际用于制作 180 GHz 行波管窗片。该结构由 2 层 MCD 和 3 层 UNCD 构成, 膜层的厚度(从下到上)分别为 $2.5 \mu\text{m}$ UNCD, $45 \mu\text{m}$ MCD, $2.5 \mu\text{m}$ UNCD, $45 \mu\text{m}$ MCD 和 $5 \mu\text{m}$ UNCD, 总厚度为 $100 \mu\text{m}$ 。该结构的特点是在复合膜中间增加了一层 UNCD, 目的是降低 MCD 最终的晶粒尺度, 从而减小表面的粗糙度, 省去研磨和抛光工艺。图 2 是用上述方法制备的 220 GHz 和 180 GHz 行波管输能窗片, 图 3 是窗片用复合金刚石膜的断面图, 这种紧密堆积的结构正是窗片高机械强度和气密性的原因。

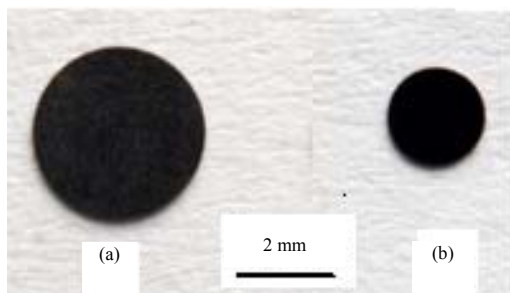


Fig.2 Photo of window disks: (a) 220 GHz , and (b) 180 GHz
图 2 两种窗片的照片: (a) 220 GHz ; (b) 180 GHz

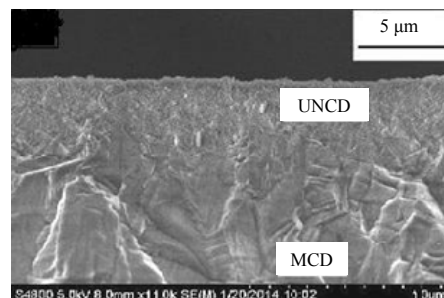


Fig.3 Cross section SEM image of a composite film
图 3 复合膜的断面图

2 结果和讨论

2.1 UNCD 膜厚对断裂强度和热导率的影响

断裂强度 σ 采用三点弯曲测试法, 通过公式(1)计算得到:

$$\sigma = 3PL/2wd^2 \quad (1)$$

式中: P 是膜层断裂时仪器测得的力; L 是 2 个支撑点之间的距离; w 和 d 分别是被测样品的宽度和厚度。基于图 1(a)的结构, 在 $100\ \mu\text{m}$ 的 MCD 上制备了不同 UNCD 厚度的复合膜, 并测出 UNCD 一侧的断裂强度。图 4 示出断裂强度随 UNCD 厚度的变化。显然, 所有复合膜的断裂强度均为 MCD 膜的 2~3 倍, 达到 $(1\ 150 \pm 150)\ \text{MPa}$ 。重要的是, 仅 $1\ \mu\text{m}$ 厚的 UNCD 就足以使断裂强度大幅度提高, 而超过 $1\ \mu\text{m}$ 厚的 UNCD 并没有明显提高断裂强度。该结论为复合膜的膜层设计提供了一个重要依据。

众所周知, 优质的 MCD 的热导率高达 $20\ \text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, 这对于微波功率器件十分重要, 例如, 它可以用于 MW 级高功率回旋管的输能窗。相比之下, UNCD 并不具备这样优异的导热性能, 因为 UNCD 的大量晶界造成声子散射。虽然复合膜热导率对于 THz 输能窗的应用并非考虑的关键因素, 但是了解 UNCD 膜厚对复合膜的导热性能的影响十分必要。测试样品类似断裂强度的测试样品, 即在 $100\ \mu\text{m}$ 的 MCD 上制备了不同 UNCD 厚度的复合膜。采用脉冲激光法在室温下测量表面的热导率。图 5 是测量得到的复合膜热导率随 UNCD 膜厚的变化。如预期一样, 室温下试样的热导率随表面 UNCD 厚度的增加而减少, 特别是在 $0\sim 2.5\ \mu\text{m}$ 范围内, 热导率下降较快; 此后, 下降速度减慢, 当 UNCD 的厚度为 $10\ \mu\text{m}$ 时, 热导率降到 $\sim 10\ \text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。这个数值与 BeO ($\sim 3.0\ \text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) 和蓝宝石 ($\sim 0.4\ \text{W}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) 相比仍然具有很大优势。

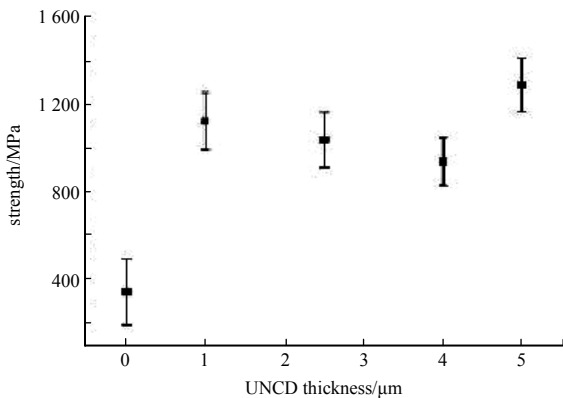


Fig.4 Fracture strength as a function of UNCD thickness
图 4 断裂强度随 UNCD 厚度的变化

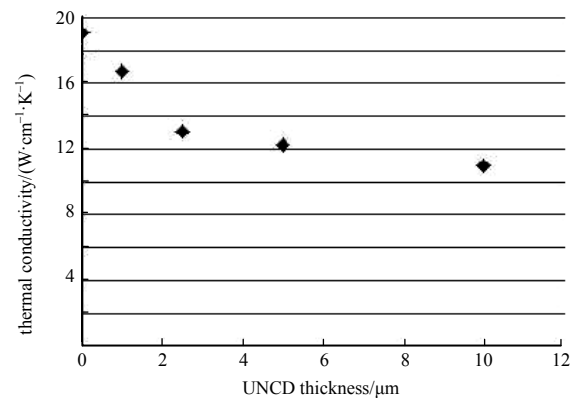


Fig.5 Thermal conductivity as a function of UNCD thickness
图 5 复合膜热导率随 UNCD 膜厚的变化

2.2 复合膜的 RF 和机械性能

由于直接测量 $180\ \text{GHz}$ 介质材料微波损耗极其困难, 所以把上述复合膜窗片焊接到窗架上, 制成复合膜金刚石窗。通过过渡波导(WR4-WR10 与 WR10-WR5), 用 Agilent N5245A 矢量网络分析仪分别测量 2 个窗的反射和传输特性。 $180\ \text{GHz}$ 窗测试结果如图 6 所示, 在 $175\sim 185\ \text{GHz}$ 的工作频率范围内, 传输损耗约为 $-3\ \text{dB}$, 单独测试过渡波导损耗为 $-1.5\ \text{dB}$, 故实际窗的传输损耗为 $(-1.5 \pm 0.25)\ \text{dB}$, $S_{11} \leq -15\ \text{dB}$ 。

图 7 是 $220\ \text{GHz}$ 窗的测试结果, 可见在 $210\sim 230\ \text{GHz}$ 频段内同样具有良好的 RF 特性, 传输损耗为 $(-2 \pm 1)\ \text{dB}$, $S_{11} \leq -10\ \text{dB}$ 。值得注意的是, 波导加工精确度和对准精确度会影响 S 参数的测量值。

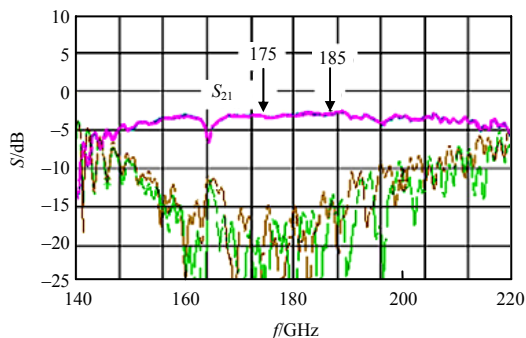


Fig.6 S-parameters for the $180\ \text{GHz}$ window
图 6 测得的 $180\ \text{GHz}$ 输能窗的 S 参数

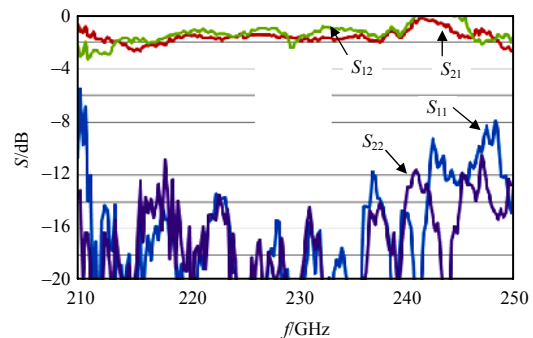


Fig.7 S-parameters for the $220\ \text{GHz}$ window
图 7 测得的 $220\ \text{GHz}$ 输能窗的 S 参数

2种窗经过漏率测试,在氦漏率仪上完成,用氦气作示漏气体。经检测,2种窗的漏率均 $\leq 1 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s}$,经过排气试验后,也未发现慢性漏气现象。为了验证窗片的可靠性,将其在真空系统中进行高温退火,也没有发现复合金刚石窗片的碎裂。这些实际应用测试表明,研制的超薄复合金刚石薄膜材料能够满足 THz 行波管输能窗的使用要求。

3 结论

研制了一种微米晶(MCD)和超纳米晶(UNCD)交替沉积的新型复合金刚石薄膜材料。研究发现 UNCD 的生长使粗糙的 MCD 表面变得平整,可以免除研磨和抛光工艺。对断裂强度和导热系数的研究表明,复合膜的断裂强度是 MCD 的 2~3 倍,极大提高了膜的机械应力。复合膜的导热系数随 UNCD 厚度的增加而减小。研制了 2 种不同结构的复合膜,并制成 180 GHz 和 220 GHz 太赫兹行波管输能窗。冷测结果表明,2种窗均具有很好的射频性能。复合金刚石输能窗的机械强度和气密性能够满足太赫兹行波管的使用要求。该研究提供了一种制备机械强度高、气密性好的超薄金刚石膜的方法,通过对材料结构的合理设计,可研制出不同频段的太赫兹行波管输能窗。

参考文献:

- [1] KIMURA T, ATKINSON J, FORREST S, et al. Design and fabrication of components for a 220 GHz 50 W sheet beam travelling wave tube amplifier[C]// 2012 IEEE Thirteenth International Vacuum Electronics Conference(IVEC). Monterey, CA, USA: IEEE, 2012: 196-197.
- [2] TUCEK J C, BASTEN M A, GALLAGHER D A, et al. Operation of a compact 1.03 THz power amplifier[C]// 2016 IEEE International Vacuum Electronics Conference(IVEC). Monterey, CA, USA: IEEE, 2016: 1-2.
- [3] TUCEK J C, BASTEN M A, GALLAGHER D A, et al. 0.850 THz vacuum electronic power amplifier[C]// IEEE International Vacuum Electronics Conference. Monterey, CA, USA: IEEE, 2013: 153-154.
- [4] SUMANT A V, AUCIELLO O, YUAN H C, et al. Large-area low-temperature ultrananocrystalline diamond(UNCD) films and integration with CMOS devices for monolithically integrated diamond MEMS/NEMS-CMOS systems[J]. SPIE Defense Security & Sensing, 2009(7318): 731817-731817-7.
- [5] GRUEN D M. Nanocrystalline diamond films[J]. Annual Review of Materials Science, 1999, 29(1): 211-259.
- [6] SHARDA T, SOGA T, JIMBO T, et al. High compressive stress in nanocrystalline diamond films grown by microwave plasma chemical vapor deposition[J]. Diamond & Related Materials, 2001, 10(3): 352-357.
- [7] DING M Q, LI L, BAI G, et al. A study of free standing diamond films for mm TWTs[C]// 2011 IEEE International Vacuum Electronics Conference(IVEC). Bangalore, India: IEEE, 2011: 387-388.
- [8] DING M Q, LI L, FENG J. Composite diamond films for short-mm wave and THz traveling wave tube windows[J]. Diamond & Related Materials, 2014(50): 129-134.

作者简介:



李莉莉(1979-),女,河北省邯郸市人,博士,高级工程师,主要研究方向为真空器件用超硬金刚石新材料, email: theuna@163.com.

丁明清(1942-),男,江苏省张家港市人,研究员,博士生导师,主要研究方向为微波真空器件相关的新材料和新工艺。

杜英华(1978-),女,济南市人,硕士,高级工程师,主要研究方向为微波电真空器件。

冯进军(1966-),男,山西省运城市人,研究员,博士生导师,主要研究方向为 MEMS 技术、太赫兹真空电子学、高频集成真空电子学等。