

间歇跳动法制备微球 α -C:H 涂层

张宝玲^{1,2}, 何智兵¹, 吴卫东^{1,*}, 杨向东², 刘兴华¹

(1. 中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900; 2. 四川大学, 四川 成都 610065)

摘要:采用低压等离子体化学气相沉积方法,以反式二丁烯和氢气作为工作气体,利用间歇跳动模式,在直径为 (280 ± 50) μm 的聚乙烯醇-聚苯乙烯(PVA-PS)双层球表面制备出了30 μm 厚 α -C:H涂层。利用原子力显微镜(AFM)、干涉显微镜和X光照相技术分别对涂层表面形貌、球形度和同心度进行表征,结果表明:当涂层厚度为30 μm 时,表面均方根粗糙度低于30 nm;球形度与同心度均优于99%。利用热重分析和傅里叶变换红外光谱仪对其热稳定性和价键结构进行表征,结果表明, α -C:H涂层主要存在 sp^3 C—H键,在280 $^{\circ}\text{C}$ 以下,结构成分非常稳定,达到450 $^{\circ}\text{C}$ 后,则完全石墨化。

关键词:惯性约束聚变靶;微球; α -C:H涂层;粗糙度;热稳定性

中图分类号:O484.41

文献标志码:A

文章编号:1000-6931(2009)09-0776-04

Fabrication of α -C:H Coating on Microshell Using Intermittent Bounce Mode

ZHANG Bao-ling^{1,2}, HE Zhi-bing¹, WU Wei-dong^{1,*}, YANG Xiang-dong², LIU Xing-hua¹

(1. Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics,
Mianyang 621900, China; 2. Sichuan University, Chengdu 610065, China)

Abstract: Using trans-2-butene and hydrogen as the precursors, 30 μm thick α -C:H coating was successfully coated on many (280 ± 50) μm diameter PVA-PS mandrels by low-pressure plasma chemical vapor deposition. The surface roughness was measured by atomic force microscopy, the result indicates that the RMS of roughness for 30 μm thick α -C:H coating is less than 30 nm. The sphericity and concentricity which were measured by interfere microscope and X-radiography are all better than 99% relatively. Thermogravimetric analysis and Fourier transform infrared spectroscopy spectrum analysis were used to obtain the heat stability and structure of the coatings relatively, and the results show that the films mainly contain sp^3 C—H bonds, and the α -C:H coating is stability below 250 $^{\circ}\text{C}$, but it is turned into graphite when the temperature is 450 $^{\circ}\text{C}$.

Key words: initial confinement fusion target; microshell; α -C:H coating; roughness; heat stability

收稿日期:2008-08-04;修回日期:2008-09-21

基金项目:中国工程物理研究院高技术课题资助项目

作者简介:张宝玲(1980—),女,河南长葛人,硕士研究生,薄膜物理专业

* 通信作者:吴卫东,研究员,E-mail: wuweidongding@163.com

自 Aisenberg 等报道 α -C:H 薄膜以来,人们对它的兴趣日益浓厚^[1]。在惯性约束聚变(ICF)实验中,碳氢(CH)材料常被用作 ICF 实验内爆靶丸烧蚀层材料。随着 ICF 研究的深入,要求涂层厚度增加,但涂层的表面粗糙度随厚度增加而急剧增加^[2],不能满足神光-Ⅲ供靶要求。故降低微球 α -C:H 涂层的表面粗糙度在靶制备研究中显得日益紧迫。

针对曾研究的碰撞对微球 α -C:H 涂层表面形貌的影响的结果,对反弹盘表面进行了改进,并改变了微球的跳动模式,有效改善了微球 α -C:H 涂层的表面形貌,为提高靶丸内爆过程的 RT 稳定性奠定了一定的实验基础^[3]。本工作在前期研究的基础上,基于间歇跳动模式,进一步减小占空比,改善微球 α -C:H 涂层的表面形貌,并对涂层的结构成分与性能进行分析。

1 实验

1.1 实验装置

微球表面 α -C:H 涂层采用低压等离子体化学气相沉积(LPPCVD)方法制备,实验装置如图 1 所示。真空系统由机械泵和分子泵组成。等离子体发生区由电感线圈与石英管组成。微球弹跳系统采用压电陶瓷作为反弹盘驱动介质^[4]。利用电磁继电器控制信号输出的占空比,从而改变微球在镀膜过程中的跳动时间与停止时间的比例。

1.2 实验条件

芯轴选用直径为 $(280\pm 50)\text{ }\mu\text{m}$ 的聚乙烯醇-

聚苯乙烯(PVA-PS)双层球。工作气体为反式二丁烯(T_2B)和氢气;背景真空度, $1\times 10^{-5}\text{ Pa}$;压强,10 Pa;功率,10 W;氢气流量, $0.5\text{ cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$;反式二丁烯流量, $0.6\text{ cm}^3\cdot\text{min}^{-1}$ 。

采用美国 Digital Instrument 公司生产的 D3000 型原子力显微镜测量微球 α -C:H 涂层表面粗糙度;利用美国牛津公司生产的 XTF-5011 型 X 光机拍摄微球的 X 光照片;用 Nicolet NEXUS670 型傅里叶变换红外光谱仪(FT-IR)对薄膜的电子结构和化学键进行表征。

2 结果与分析

2.1 表面形貌分析

在间歇跳动模式下,随着占空比越来越小(从 1/2 到 1/3 再到 1/4),制备出的涂层表面粗糙度明显呈下降趋势^[3]。为在 PVA-PS 双层球表面制备表面光洁性较好的 α -C:H 薄膜,实验中将跳动时间设为 5 s,停止跳动时间设为 20 s,使占空比减小为 1/5。原子力显微镜下 PVA-PS 双层球上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 厚 α -C:H 薄膜的表面形貌如图 2 所示,其扫描范围为 $20\text{ }\mu\text{m}\times 20\text{ }\mu\text{m}$ 。

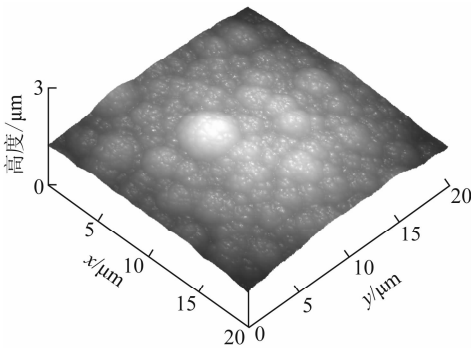


图 2 占空比为 1/5 时 α -C:H 涂层的 AFM 照片
Fig. 2 AFM image of α -C:H film deposited by 1/5 duty ratio

由图 2 看出,当占空比为 1/5 时,制备出的 α -C:H 涂层表面均方根粗糙度为 29 nm,大颗粒较少,颗粒较均匀,涂层较平整。为获得表面光洁性更高的 α -C:H 涂层,把跳动时间设为 5 s,停止跳动时间设为 30 s,使占空比减小到 1/7。镀膜过程中观察到,当反弹盘电压不变

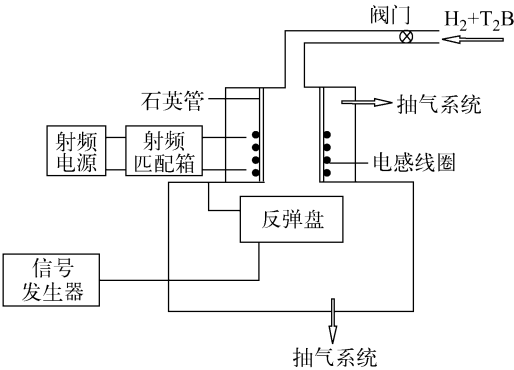


图 1 低压等离子体化学气相沉积实验装置
Fig. 1 Experimental equipment of low-pressure plasma chemical vapor deposition

时,在此占空比条件下不能维持微球的稳定跳动,此时只能制备出非球形的靶丸,无法达到ICF实验中内爆靶丸的品质要求。

2.2 球形度、同心度分析

利用间歇跳动模式,在微球上制备 α -C:H 涂层,可改善涂层表面形貌,但同时可能造成微球 α -C:H 涂层的厚度不均匀或微球球形度变差,无法满足 ICF 实验用靶需求。因此,对占空比为 1/5 时制备的微球 α -C:H 涂层的厚度均匀性及微球的球形度进行了分析。图 3a 为 CH-PVA-PS 微球在德国 Leitz 干涉显微镜下的光学照片,放大倍数为 100,CH-PVA-PS 微球的球形度优于 99%。CH-PVA-PS 微球的 X 光照片如图 3b 所示,涂层厚度较均匀,根据测试结果知,微球的同心度优于 99%。

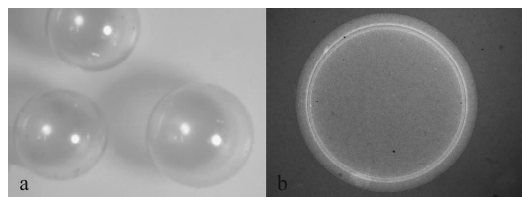


图 3 CH-PVA-PS 微球的光学照片(a)和 X 光照片(b)

Fig. 3 Optical (a) and X-radiography (b) photoes of CH-PVA-PS microshell

2.3 微球表面 α -C:H 涂层结构分析

图 4 为制备出的 α -C:H 涂层的傅里叶红外吸收光谱。一般认为,2 870~3 000 cm^{-1} 处出现伸缩振动则表明存在 sp^3 C—H 键;3 000~3 100 cm^{-1} 处出现伸缩振动表明存在 sp^2 C—H 键^[5],而 1 300~1 500 cm^{-1} 处的吸收峰则对应于各种 C—H 基团的弯曲振动^[6]。在图 4 中,2 800~3 000 cm^{-1} 区域出现较强的振动峰面积较大的 C—H 伸缩振动吸收谱。在 2 870、2 928 和 2 958 cm^{-1} 处出现的特征峰分别对应 sp^3 CH₃ 对称伸缩振动吸收、 sp^3 CH₂ 反对称伸缩振动吸收和 sp^3 CH₃ 反对称伸缩振动吸收;在 3 000~3 100 cm^{-1} 范围未观测到特征峰,表明 α -C:H 涂层中无 sp^2 C—H 基团。故在所制备的薄膜中,碳氢原子形成的 C—H 基团以 sp^3 C—H 为主。在 1 374.5、1 457.9 cm^{-1} 处出现的吸收峰对应 sp^3 CH₃ 对称弯曲振动和不对称弯

曲振动;在 1 600~1 740 cm^{-1} 处存在的吸收峰为 C=C 键^[7]。在 3 700 cm^{-1} 附近存在弱的吸收峰说明存在游离态 O—H 键。样品中引入的游离 O—H 键可能是样品在取出真空室后和测样过程中被大气污染所致。

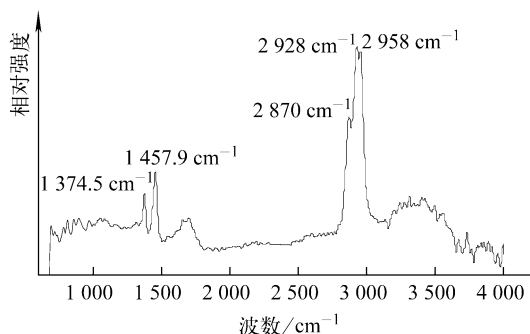


图 4 α -C:H 涂层的傅里叶红外吸收光谱

Fig. 4 FT-IR absorption spectrum of α -C:H film

2.4 热稳定性分析

制备出的 α -C:H 薄膜的热稳定性分析结果如图 5 所示。由图 5 可看出,在 280 $^{\circ}\text{C}$ 以下, α -C:H 薄膜结构成分非常稳定,达到了 ICF 实验中的供靶要求。在接近 300 $^{\circ}\text{C}$ 时,薄膜中的氢逐渐逸出, sp^2 成分增加, sp^3 成分减少。高于 360 $^{\circ}\text{C}$ 后,薄膜中的氢大量逸出,薄膜结构快速向石墨态转化,高于 450 $^{\circ}\text{C}$ 后,基本完全转变为石墨相。 α -C:H 薄膜共失重 54.42%。

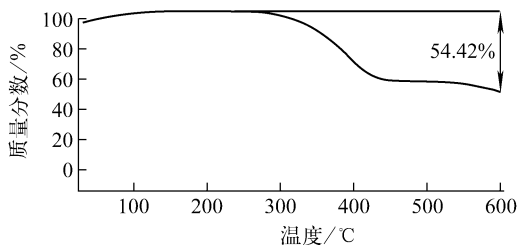


图 5 α -C:H 涂层的热稳定性

Fig. 5 Heat stability of α -C:H film

3 结论

在间歇跳动模式下,当占空比为 1/5 时,在直径为 (280 ± 50) μm 的 PVA-PS 双层球表面,可制备出厚度为 30 μm 的 α -C:H 涂层,其表面均方根粗糙度小于 30 nm。用 Leitz 干涉显微镜和 X 光照相技术对 CH-PVA-PS 微球的球

形度、同心度进行了表征,结果表明,球形度与同心度均优于 99%。利用热重分析和傅里叶变换红外光谱仪对其热稳定性和价键结构进行表征,结果表明, α -C:H 涂层主要存在 sp^3 C—H 键,低于 280 °C,结构成分非常稳定,高于 450 °C,完全石墨化。在占空比小于 1/7 的间歇跳动模式下不能维持微球的稳定跳动。

参考文献:

- [1] 吴卫东,罗江山,黄勇,等. H_2 及 H^+ 对 C_xH_{1-x} 薄膜表面状态的影响[J]. 强激光与粒子束,2000, 12(5):593-596.
WU Weidong, LUO Jiangshan, HUANG Yong, et al. The effect of H_2 and H^+ on C_xH_{1-x} film surface state[J]. High Power Laser and Partical Beams, 2000, 12(5): 593-596(in Chinese).
- [2] THEOBALD M, U MAY B D, CHICANNE C, et al. Roughness optimization at high mode for GDP CH_x microshells[J]. Fusion Science and Technology, 2004, 45: 176-179.
- [3] 张宝玲,吴卫东,何智兵,等. 跳动模式对微球 CH 涂层表面粗糙度的影响[J]. 强激光与粒子束,2008,20(7):1 109-1 113.
ZHANG Baoling, WU Weidong, HE Zhibing, et al. Influnce of bounce mode on surface roughness of CH coating on microshells[J]. High Power Laser and Partical Beams, 2008, 20(7): 1 109-1 113(in Chinese).

- [4] 黄勇,吴卫东,魏胜,等. 塑料微球厚有机涂层制备研究[J]. 原子能科学技术,2002,36(4/5): 343-347.
HUANG Yong, WU Weidong, WEI Sheng, et al. Study on the coating of thick C_xH_{1-x} film on the polymer micro-spherical shell [J]. Atomic Energy Science and Technology, 2002, 36(4/5): 343-347(in Chinese).
- [5] 常海波,许洮,李红轩,等. PECVD 法制备类金刚石薄膜的结构和摩擦学性能研究[J]. 真空, 2006,43(1):47-50.
CHANG Haibo, XU Tao, LI Hongxuan, et al. Study on microstructure and tribological properties of diamond-like carbon films deposited by PECVD[J]. Vacuum, 2006, 43(1): 47-50 (in Chinese).
- [6] 李红轩,徐洮,陈建敏,等. 射频功率对类金刚石薄膜结构和性能的影响[J]. 物理学报,2005,54(4): 1 885-1 889.
LI Hongxuan, XU Tao, CHEN Jianmin, et al. Effect of RF power on the structure and properties of diamond-like carbon films[J]. Acta Physics Sinica, 2005, 54(4): 1 885-1 889 (in Chinese).
- [7] CZECHOWICZ D G, CASTILLO E R, NI-KROO A. Composition and structural of strong glow discharge polymer coatings[J]. Fusion Science and Technology, 2002, 41: 190-192.