

类金刚石薄膜在硅基底上的沉积及其热导率

艾立强 张相雄 陈民 熊大曦

Deposition and thermal conductivity of diamond-like carbon film on a silicon substrate

Ai Li-Qiang Zhang Xiang-Xiong Chen Min Xiong Da-Xi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 096501 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.096501

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.096501>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I9>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

异质结碳纳米管的热整流效率

Thermal rectification of heterojunction nanotubes

物理学报.2015, 64(21): 216501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.216501>

多约束纳米结构的声子热导率模型研究

A model for phonon thermal conductivity of multi-constrained nanostructures

物理学报.2015, 64(14): 146501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.146501>

基于稳态电热拉曼技术的碳纳米管纤维导热系数测量及传热研究

Thermal characterization of carbon nanotube fibers based on steady-state electro-Raman-thermal technique

物理学报.2015, 64(12): 126501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.126501>

考虑界面散射的金属纳米线热导率修正

Thermal conductivities of metallic nanowires with considering surface and grain boundary scattering

物理学报.2013, 62(18): 186501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.186501>

非简谐振动对纳米金刚石表面性质的影响

The influence of anharmonicity on the surface effect in nanodiamond

物理学报.2012, 61(10): 106501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.106501>

## 类金刚石薄膜在硅基底上的沉积及其热导率\*

艾立强<sup>1)</sup> 张相雄<sup>2)</sup> 陈民<sup>1)</sup> 熊大曦<sup>2)†</sup>

1) (清华大学工程力学系, 北京 100084)

2) (中国科学院苏州生物医学工程技术研究所, 江苏省医用光学重点实验室, 苏州 215163)

(2015年11月16日收到; 2016年2月5日收到修改稿)

采用分子动力学方法模拟了碳在晶体硅基底上的沉积过程, 并分析计算了所沉积的类金刚石薄膜的面向及法向热导率. 对沉积过程的模拟表明, 薄膜密度及  $sp^3$  杂化类型的碳原子所占比例均随沉积高度的增加而减小, 在碳原子以 1 eV 能量垂直入射的情况下, 在硅基底上沉积的薄膜密度约为  $2.8 \text{ g/cm}^3$ ,  $sp^3$  杂化类型的碳原子所占比例约为 22%, 均低于碳在金刚石基底上沉积的情况. 采用 Green-Kubo 方法, 计算了所沉积类金刚石薄膜的热导率, 其面向热导率可以达到相同尺寸规则金刚石晶体的 50% 左右, 并且随着薄膜密度与  $sp^3$  杂化类型碳原子所占比例的升高而升高.

**关键词:** 类金刚石薄膜, 化学气相沉积, 热导率, 分子动力学模拟

**PACS:** 65.80.-g, 71.15.Pd

**DOI:** 10.7498/aps.65.096501

## 1 引言

大功率白光 LED 在医疗检测、保密通信、特殊照明等领域有着广阔的应用前景, 但芯片散热问题严重制约其发展. 为了解决芯片散热问题, 有研究者提出在 LED 芯片的硅基底上通过化学气相沉积法沉积一层类金刚石 (diamond like carbon, DLC) 薄膜来提高其散热能力<sup>[1,2]</sup>. 金刚石、石墨烯以及许多新型碳材料都具有独特的导热性质, 但目前还没有对于 DLC 薄膜导热性质的研究, 利用 DLC 薄膜解决 LED 散热问题的可行性还有待进一步论证.

DLC 是一种无定形碳, 其中部分碳原子的轨道杂化类型为  $sp^3$ , 与金刚石晶体相同, 形成局部正四面体结构<sup>[3]</sup>. 在实验中, 可以通过化学气相沉积等方法制备 DLC 薄膜并研究不同温度压力等条件对薄膜结构的影响<sup>[4]</sup>, 但实验难以对 DLC 薄膜的结构参数与导热性质之间的关系做出准确表征. 与实验相比, 分子动力学模拟有助于我们研究不同制备工艺对 DLC 薄膜结构特征、不同杂化类型比例

以及导热性质的影响.

Kaukonen 和 Nieminen<sup>[5]</sup> 采用 Tersoff 势能模型率先模拟了碳原子在规则金刚石基底上的沉积过程. 他们沉积的 DLC 薄膜包含 320 个碳原子, 薄膜密度为  $3.3 \text{ g/cm}^3$ , 在入射能量为 40 eV 时  $sp^3$  杂化类型碳原子所占的比例可以达到 44%. 随后, 文献<sup>[6-10]</sup> 分别研究了不同势能模型以及入射能量, 入射角度等参数对碳原子沉积形成的 DLC 薄膜的密度、配位数、杂化类型、径向分布函数、内应力等特征参数的影响. 其中, 只有 Huang 等<sup>[11]</sup> 考虑了异质沉积基底的影响, 模拟了碳原子在硅基底上的沉积过程, 沉积得到的 DLC 薄膜的密度和  $sp^3$  杂化类型碳原子所占的比例均低于在规则金刚石基底上沉积的 DLC 薄膜. 目前对沉积 DLC 薄膜的研究普遍关注其结构特征, 尚未见对其导热性质的研究.

在实际沉积过程中, 碳原子可能会以原子团簇或含氢碳的形式出现. Li 等<sup>[12,13]</sup> 使用分子动力学方法模拟了载能的  $C_2$  及环状  $C_{10}$  团簇在金刚石表面的沉积过程, 发现  $C_2$  团簇与  $C_{10}$  团簇相比, 仅需

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51376191, 51321002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [xiongd@xibet.ac.cn](mailto:xiongd@xibet.ac.cn)

较低的能量就可以在金刚石基底表面沉积,而且在相同的入射条件下, C<sub>2</sub> 团簇沉积形成的 DLC 薄膜的碳原子 sp<sup>3</sup> 杂化类型比例高于 C<sub>10</sub> 团簇沉积形成的 DLC 薄膜. Marukami 等 [8] 使用分子动力学模拟了含氢碳 CH<sub>3</sub> 与 CH 在金刚石基底上的沉积,表明含氢碳会在金刚石基底表面首先形成一个浅表层,然后随着后续沉积原子的注入逐渐形成碳原子之间的 sp<sup>3</sup> 杂化结构,而且含氢碳原子沉积形成的 DLC 薄膜中碳原子 sp<sup>3</sup> 杂化类型比例高于不含氢碳原子沉积 [5,7,9] 形成的薄膜. 上述研究表明,相较于团簇以及含氢碳沉积方式,单碳原子沉积方式得到的 DLC 薄膜中碳原子 sp<sup>3</sup> 杂化类型比例最高. 本文重点关注在硅基底上模拟沉积的 DLC 薄膜的导热性质及其中碳原子 sp<sup>3</sup> 杂化类型比例对导热的影响规律,希望首先得到共性的规律,因此选取单碳原子沉积方式.

## 2 模拟方法

分子模拟中描述碳材料的势能模型有 Tersoff 势能模型 [14], Brenner 势能模型 [15]、改进的第二代 Brenner 模型 [16], Reax 反应力场模型等 [17]. 其中, Tersoff 势能模型可以较为准确地描述金刚石、单晶硅以及碳硅化合物体系,对碳原子与硅原子之间的二体作用势描述准确. 而 Brenner 势能模型不能描述硅原子, Reax 反应力场模型的计算成本太高,因此本文模拟采用 Tersoff 势能模型. 在 Tersoff 势能模型中,系统总势能表示为

$$E = \sum_{i \neq j} f_C(r_{ij}) [f_R(r_{ij}) + b_{ij} f_A(r_{ij})], \quad (1)$$

其中排斥力和吸引力分别为

$$\begin{aligned} f_R(r_{ij}) &= A_{ij} \exp(-\lambda_{ij} r_{ij}), \\ f_A(r_{ij}) &= B_{ij} \exp(-\mu_{ij} r_{ij}). \end{aligned} \quad (2)$$

截断函数是一个分段衰减函数

$$f_C(r_{ij}) = \begin{cases} 1, & r_{ij} \leq R_{ij}, \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \cos \left[ \frac{\pi(r_{ij} - R_{ij})}{S_{ij} - R_{ij}} \right], & R_{ij} < r_{ij} < S_{ij}, \\ 0, & r_{ij} \geq S_{ij}. \end{cases} \quad (3)$$

势能模型中各参数取自文献 [13]. 本文中运动方程积分采用速度 Verlet 算法 [18], 时间步长取为 0.5 fs. 使用了分子动力学模拟的开源软件 Lammmps [19].

碳原子在晶体硅基底上沉积的模拟系统设置如图 1. 模拟区域为一个长方体,系统沿  $x, y, z$  方向上的尺寸为  $43.5 \text{ \AA} \times 43.5 \text{ \AA} \times 103.4 \text{ \AA}$ ,  $x$  及  $y$  方向采用周期性边界条件,碳原子沿  $z$  方向沉积. 模拟空间底部是晶体硅基底,厚度为  $21.8 \text{ \AA}$ . 模拟中将这些硅原子从下到上分为三个区:最下面的四层硅原子为固壁区,原子位置固定;中间厚度为  $7.26 \text{ \AA}$  的硅原子为热浴区,在模拟中通过 Noose-Hover 热浴进行控温,温度控制为  $300 \text{ K}$  的沉积温度;最上面厚度为  $10.9 \text{ \AA}$  的原子为自由区,在模拟中不施加温度控制条件. 在系统的最上方添加一个人工的吸附壁面,当碳原子以较高速度撞击硅基底表面出现反弹时,将其吸附,避免原子溢出导致计算中止. 这部分吸附原子对沉积区域没有可见的影响.

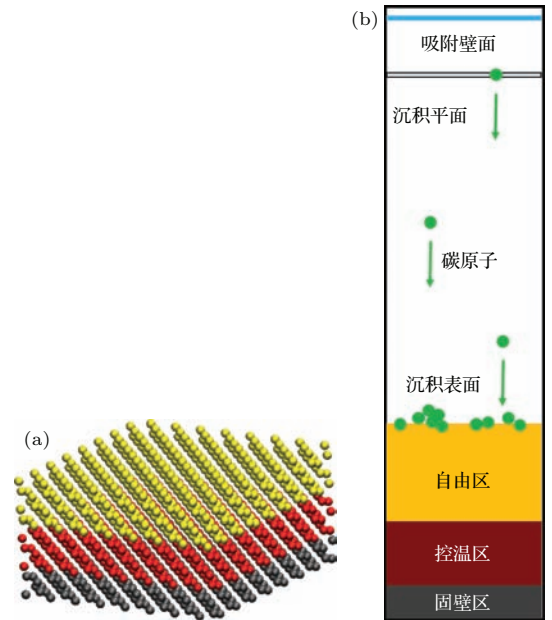


图 1 (网刊彩色) 模拟系统示意图 (a) 沉积开始前硅基底的分子快照; (b) 模拟体系示意图

Fig. 1. (color online) MD simulation system: (a) Silicon substrate structure before deposition; (b) model of deposition.

模拟开始时,先对除固壁区外的硅基底进行 Noose-Hover 控温 [20], 采用 NVT 系综, 沉积温度  $300 \text{ K}$ , 控温松弛因子  $\tau = 75 \text{ fs}$ , 运行  $0.5 \text{ ns}$  后取消控温,再运行  $0.5 \text{ ns}$ ,使硅基底的结构充分松弛. 随后进入沉积过程,每隔  $0.5 \text{ ps}$  从距离硅基底表面  $65.4 \text{ \AA}$  处的入射平面上随机位置向系统内入射一个碳原子,以速度  $v$  沿  $z$  方向运动. 碳原子初始速度可以用入射能量来表征:

$$U_0 = \frac{1}{2} m v^2, \quad (4)$$

其中  $m$  为碳原子的质量,  $U_0$  为入射能量, 单位是 eV. 1 eV 的入射能量对应碳原子初始速度  $40 \text{ \AA}/\text{ps}$ . 在碳原子沉积的同时对热浴区的硅原子施加前述 Noose-Hover 控温, 温度控制在 300 K 下. 在 7.5 ns 内共沉积了 15000 个原子. 沉积过程结束后, 继续运行 1 ns, 使沉积的 DLC 薄膜结构充分松弛.

对于沉积得到的 DLC 薄膜, 使用 Green-Kubo 方法<sup>[21]</sup> 计算其面向和法向热导率. 在热导率计算中, 对沉积的 DLC 薄膜结构沿  $z$  方向分层, 截取的 DLC 薄膜片层尺寸为  $43.5 \text{ \AA} \times 43.5 \text{ \AA} \times 10.0 \text{ \AA}$ . 在模拟中, 采用 NVE 系综, 时间步长取为 0.5 fs, 系统先自由运行 0.5 ns, 达到充分松弛状态. 随后运行 0.5 ns, 每 0.5 fs 采集一次瞬态热流. 热流的计算公式为

$$Q = \frac{1}{V} \left( \sum_i v_i E_i + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j>i} r_{ij} \cdot F_{ij} \cdot (v_i + v_j) \right), \quad (5)$$

其中第一项表示由于粒子运动所引起的热流, 第二项表示由于粒子间相互作用引起的热流. 根据 Green-Kubo 方法, 其面向热导率为

$$\kappa = V k_B^{-1} T^{-2} \int_0^\infty \langle Q(t) Q(t+t') \rangle dt', \quad (6)$$

其中,  $k_B$  是玻尔兹曼常数,  $T$  是系统温度,  $V$  是系统体积, 积分项是热流分量的自相关函数.

### 3 结果与讨论

图 2 为入射能量为 1 eV 时, 在硅基底上沉积不同数量碳原子的 DLC 薄膜分子快照. 沉积过程开始时, 碳原子以较高的速度撞击硅晶体的表面, 部分碳原子结合在硅晶体的表面, 部分碳原子贯穿硅晶体的浅表层, 同时部分硅原子被撞离晶体表面, 与新沉积的 DLC 薄膜发生掺混, 模拟结果在一定程度上支持 Lifshitz 等<sup>[22]</sup> 提出的浅表层注入模型. 由于硅晶体的晶格常数 ( $5.39 \text{ \AA}$ ) 比金刚石晶体的晶格常数 ( $3.59 \text{ \AA}$ ) 大一些, 因此这种碳原子与硅原子的掺混作用相较于碳原子在金刚石晶体基底上的沉积更为显著, 掺混后形成的碳硅混合层有助于沉积的 DLC 薄膜与硅基底的紧密结合. 当沉积原子数为 2000 时, 沉积的 DLC 薄膜基本属于碳硅混合层, 当沉积原子数进一步增加时, 在碳硅混合层上会沉积形成新的以碳原子为主的纯碳层, 纯碳层构成 DLC 薄膜结构的主要部分. 根据图 3 中碳原子在碳硅混合体系中的比例随沉积高度的变化(碳

原子入射能量 1 eV, 沉积原子数 15000), 我们可以看到, 在碳硅混合层 ( $5\text{--}35 \text{ \AA}$ ) 中, 碳原子所占的比例随高度的增加均匀连续增加, 这说明在碳原子沉积表面生成的碳硅混合层具有较为均匀稳定的性质, 而在纯碳层 ( $35\text{--}80 \text{ \AA}$ ) 中, 碳原子所占比例接近 100%, 可以认为是单相碳材料. 图 3 显示了薄膜的相对密度沿沉积高度的分布, 即薄膜的实际密度与规则金刚石晶体的密度  $3.5 \text{ g/cm}^3$  的比值. 在纯碳层的最底端, DLC 薄膜的密度最高, 可达金刚石晶体密度的 80%, DLC 薄膜的密度会随着沉积高度的增加而逐渐降低. 在沉积过程中, 沉积形成的 DLC 薄膜会不断受到后续沉积的碳原子的冲击作用, 产生压力形式的局部内应力. 在内应力的作用下, 薄膜中的碳原子发生相对运动, 形成更紧密的结合方式, 导致薄膜的局部密度升高. 越靠近表层的 DLC 薄膜受到后续沉积碳原子的冲击时间越短, 所以薄膜密度会随着沉积高度的增加而逐渐降低. Huang 等<sup>[11]</sup> 的研究也报道了类似的密度变化规律.

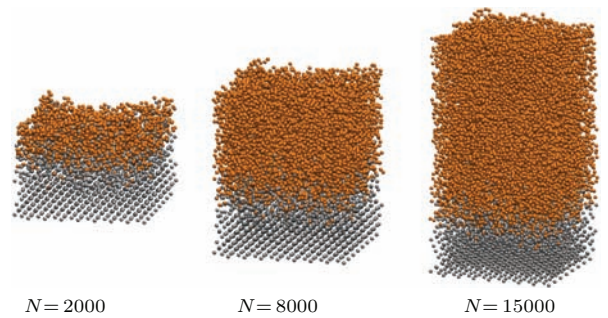


图 2 (网刊彩色) 在硅基底上沉积不同数目的碳原子得到的 DLC 薄膜的分子快照 (灰色为硅, 棕色为碳)

Fig. 2. (color online) Film structure of different numbers of deposited carbon atoms (grey-Si, brown-C).

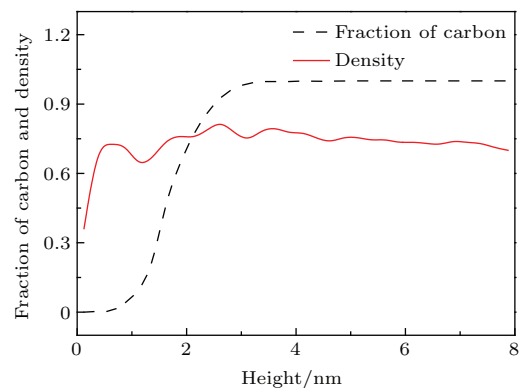


图 3 DLC 薄膜中碳原子所占比例及薄膜相对密度沿沉积高度的分布

Fig. 3. Fraction of carbon and film density versus height.



为了进一步分析沉积的 DLC 薄膜的结构特征, 比较其与金刚石结构的相似性, 我们重点考察 DLC 薄膜的密度以及薄膜中  $sp^3$  与  $sp^2$  杂化类型的比例. 通过原子配位数来定义碳原子的杂化类型, 原子配位数描述了在一个中心碳原子周围以 C—C 化学键与其相连的原子数, 在金刚石晶体中, 每个碳原子都与周围的四个碳原子以 C—C 单键相连, 键长 1.55 Å, 形成空间正四面体结构, 因此原子配位数 4 对应杂化类型  $sp^3$ . 类似地, 在石墨晶体中, C—C 单键只存在于石墨的单层平面内, 每个碳原子与周围的三个碳原子以 C—C 单键相连, 键长 1.42 Å, 形成平面正三角形结构. 而石墨的层间距为 3.40 Å, 超过了 C—C 化学键的作用距离, 在片层之间碳原子的作用为范德华力, 因此原子配位数 3 对应杂化类型  $sp^2$ . 在对模拟得到的 DLC 薄膜进行统计分析时, 选定一个合适的截断半径, 对于每一个中心碳原子, 与它距离小于该截断半径的碳原子的数目就是其配位数. 根据 Wang 和 Komvopoulos<sup>[10]</sup> 的研究, 本文计算碳原子配位数的截断半径取 1.85 Å. 沉积的 DLC 薄膜在  $z$  方向上分为 5 Å 的片层, 统计其中碳原子的配位数.  $x$  及  $y$  方向采用周期性边界条件, 需计算中心原子与各镜像原子之间的最短距离. 将 5 Å 的片层在  $z$  方向上下各扩展 2 Å 作为扩展区域, 统计时, 在片层区域内逐个选取中心碳原子, 在扩展区域内检索其配位碳原子. 本文根据入射能量 1 eV, 沉积碳原子数 15000 的算例统计了沉积的 DLC 薄膜中碳原子的杂化类型比例及分布, 如图 4 所示. 图 5 显示了 DLC 薄膜的  $sp^2$  及  $sp^3$  两种杂化类型比例沿沉积高度的分布. 可以看到, 以  $sp^3$  类型杂化的碳原子均匀分布在沉积的 DLC 薄膜中, 所占比例最高可达 22%, 而且随着沉积高度的增加  $sp^3$  杂化类型碳原子所占的比例逐渐降低, 表现出与密度变化的正相关性. 这种随着沉积高度增加  $sp^3$  杂化类型碳原子所占的比例逐渐降低的原因应该与密度下降的原因相同. 与 Kim 等<sup>[7]</sup> 及 Wang 和 Komvopoulos<sup>[10]</sup> 的沉积结构相比,  $sp^3$  杂化比例较低, 这可能与沉积的基底有关. 当碳原子在金刚石晶体上沉积时, 基底的结构骨架有助于薄膜沿规则金刚石结构生长. 而在硅基底上沉积时, 由于硅基底和沉积的碳原子之间晶格不匹配, 导致 DLC 薄膜中的碳原子难以形成规则的正四面体

晶格.

图 6 为沉积的 DLC 薄膜不同片层的热导率随高度的变化, 其中规则金刚石晶体与截取的 DLC 薄膜尺寸相近 ( $43.5 \text{ \AA} \times 43.5 \text{ \AA} \times 10.8 \text{ \AA}$ ). 计算得到规则金刚石晶体的热导率为  $10.55 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , 低于实验测得的宏观金刚石晶体的热导率. 这主要是由于在纳米尺度的薄膜中, 尺度效应起重要作用. 研究表明, 金刚石晶体具有很长的声子平均自由程, 在计算区域尺寸小于该平均自由程时, 热导率会随尺度近似线性变化规律<sup>[23]</sup>. 吴国强等<sup>[24]</sup> 计算的边长为 4.97 nm 的金刚石立方晶体的法向热导率为  $32.4 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , 王亚辉等<sup>[25]</sup> 计算的金刚石体相热导率在 2—4 nm 尺寸下为  $18\text{—}44 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , 与我们的计算结果基本相符. 考虑到不同的模拟体系以及计算方法可能对热导率数值有所影响, 本文在保持模拟计算方法相同的情况下, 将 DLC 薄膜与规则金刚石晶体热导率进行比较, 评估 DLC 薄膜的导热性质.

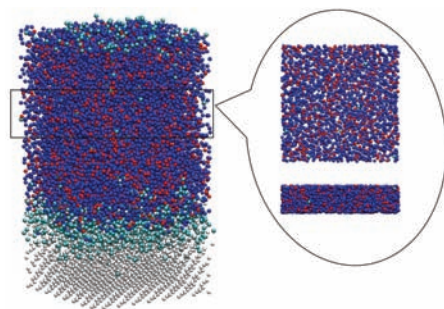


图 4 (网刊彩色) DLC 薄膜中不同杂化类型的分布 (红色  $sp^3$ , 蓝色  $sp^2$ , 青色  $sp$ )

Fig. 4. (color online) Distribution of carbon atom hybridization (red- $sp^3$ , blue- $sp^2$ , cyan- $sp$ ).

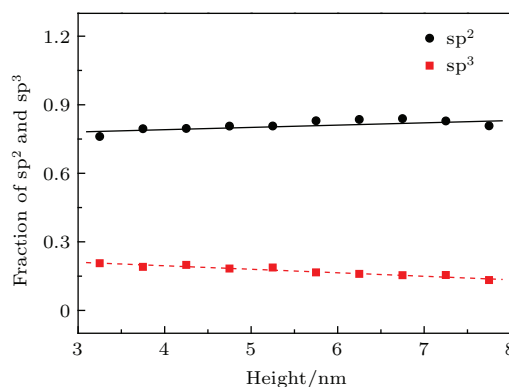


图 5 DLC 薄膜两种杂化类型碳原子所占的比例沿沉积高度的分布

Fig. 5. Fraction of  $sp^3$  and  $sp^2$  versus height.

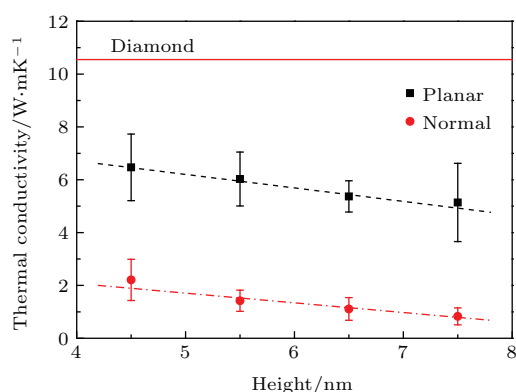


图6 DLC薄膜不同层数的面向及法向热导率随层数的变化(实线为相同尺寸规则金刚石薄膜的面向热导率)

Fig. 6. Planar and normal thermal conductivity of different layers of the film and compared diamond (solid line- planar thermal conductivity of diamond with the same size).

从图6可以看出, DLC薄膜的面向热导率可以达到相同尺寸规则金刚石晶体热导率的50%左右, 并且随着密度及 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占比例的升高而升高. 这说明沉积的DLC薄膜可能具有与规则金刚石晶体以及其他含有 $sp^3$ 杂化结构的新型碳材料<sup>[26]</sup>类似的导热性质. 与Huang等<sup>[11]</sup>的结果类似, 在硅基底上沉积的薄膜中的碳原子形成 $sp^2$ 杂化的比例高于形成 $sp^3$ 杂化的比例. 但化学气相沉积得到的这种无定形碳薄膜中 $sp^2$ 杂化类型的碳原子分布没有统一的取向性, 不能形成石墨片层之间的大 $\pi$ 键来提供电子及声子输运通路, 而面向热导率随着 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占的比例的升高而升高. 这种无定形碳的导电导热机理更接近于金刚石.

规则金刚石主要依靠声子导热. 在金刚石晶体中, 碳原子以 $sp^3$ 类型杂化形成空间正四面体结构, 该结构中声子声速很高, 因此金刚石晶体具有极高的热导率. 在我们沉积的DLC薄膜中, 也存在着类似的以 $sp^3$ 类型杂化的碳原子构成的空间四面体结构, 相对于一般的无定型碳结构, 提高了局部声子声速, 进而增大了DLC薄膜的面向热导率. 而随着沉积厚度的增加, DLC薄膜中的 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占的比例下降, 其对DLC薄膜局部声子声速的增加效果减弱, 热导率也有所下降.

我们使用与面向热导率相同的方法计算了所沉积的DLC薄膜的法向热导率, 如图6所示. 计算得到的法向热导率为0.83—2.22 W/(m·K), 并且随着 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占比例的升高而升高. Shamsa等<sup>[27]</sup>通过对无定形碳薄膜热导率进

行实验测量, 拟合了热导率与密度的依存关系式, Ferrari等<sup>[28]</sup>通过晶体衍射研究拟合了薄膜密度与 $sp^3$ 杂化比例的依存关系式. 将文献<sup>[28]</sup>的关系式代入文献<sup>[27]</sup>的关系式, 可以得到

$$\kappa = 2.4249f(sp^3) + 0.5784, \quad (7)$$

该结果与本文得到的薄膜热导率随 $sp^3$ 杂化比例的变化规律基本相符. DLC薄膜的法向热导率明显低于面向热导率, 其主要原因应该是由薄膜片层的法向尺寸明显小于面向尺寸, 相干长度较长的声子模态在法向受到明显抑制.

## 4 结 论

本文使用分子动力学方法模拟了碳原子在硅基底上的沉积过程. 沉积的DLC薄膜密度约为2.8 g/cm<sup>3</sup>, 而且薄膜密度与DLC薄膜中的 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占的比例正相关. 在沉积的DLC薄膜结构中, 随着沉积高度的增加, 薄膜密度与 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占的比例都有所下降,  $sp^3$ 杂化类型碳原子所占的比例最高可达22%. 在硅基底上沉积的薄膜的密度和热导率均低于在金刚石基底上沉积的情况.

采用Green-Kubo方法计算了模拟所沉积的DLC薄膜的热导率. 计算结果表明, 所沉积的DLC薄膜的面向热导率高于法向热导率, 二者均随着密度与 $sp^3$ 杂化类型碳原子所占比例的升高而升高, 其中薄膜面向热导率可以达到相同尺寸规则金刚石晶体热导率的50%左右. 这一结果初步验证了DLC薄膜应用于大功率LED散热设计的可行性.

## 参考文献

- [1] Wang J, Liu G C, Li H L, Hou B R 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 058102 (in Chinese) [王静, 刘贵昌, 李红玲, 侯保荣 2012 物理学报 **61** 058102]
- [2] Song J M, Gan M J, Cai B Y 2012 *J. Eng. Mater. Taiwan* **304** 124 (in Chinese) [宋健民, 甘明吉, 蔡百扬 2012 工业材料杂志(台湾) **304** 124]
- [3] Balandin A A 2011 *Nat. Mater.* **10** 569
- [4] Hu M H, Bi N, Li S S, Su T C, Zhou A G, Hu Q, Jia X P, Ma H A 2015 *Chin. Phys. B* **24** 038101
- [5] Kaukonen H P, Nieminen R 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 620
- [6] Ma T B, Hu Y Z, Wang H 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 480 (in Chinese) [马天宝, 胡元中, 王慧 2007 物理学报 **56** 480]
- [7] Kim K S, Lee S H, Kim Y C, Lee S C, Cha P R, Lee K R 2008 *Met. Mater. Int.* **14** 347

- [8] Murakami Y, Horiguchi S, Hamaguchi S 2010 *Phys. Rev. E* **81** 041602
- [9] Joe M, Moon M W, Oh J, Lee K H, Lee K R 2012 *Carbon* **50** 404
- [10] Wang N, Komvopoulos K 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 245303
- [11] Huang D M, Pu J B, Lu Z B, Xue Q J 2012 *Surf. Interface Anal.* **44** 837
- [12] Li Z J, Pan Z Y, Wei Q, Du A J, Huang Z, Zhang Z X, Ye X S, Bai T, Wang C, Liu J R 2003 *Eur. Phys. J. D* **23** 369
- [13] Li Z J 2004 *Ph. D. Dissertation* (Shanghai: Fudan University) (in Chinese) [李之杰 2004 博士学位论文(上海: 复旦大学)]
- [14] Tersoff J 1989 *Phys. Rev. B* **39** 5566
- [15] Brenner D W 1990 *Phys. Rev. B* **42** 9458
- [16] Brenner D W, Shenderova O A, Harrison J A, Stuart S J, Ni B, Sinnott S B 2002 *J. Phys. Condes. Matter* **14** 783
- [17] Duin A C T V, Dasgupta S, Lorant F, Goddard W A 2001 *J. Phys. Chem. A* **105** 9396
- [18] Verlet L 1967 *Phys. Rev.* **159** 98
- [19] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys.* **117** 1
- [20] Evans D J, Hoover W G, Failer B H, Moran B, Ladd A J C 1983 *Phys. Rev. A* **28** 1016
- [21] Frenkel D, Smit B 1996 *Phys. Today* **50** 7
- [22] Lifshitz Y 1990 *Phys. Rev. B* **41** 10468
- [23] Li X B, Tang D W, Zhu J 2008 *J. Univ. Chin. Acad. Sci.* **25** 598 (in Chinese) [李小波, 唐大伟, 祝捷 2008 中国科学院大学学报 **25** 598]
- [24] Wu G Q, Kong X R, Sun Z W, Wang Y H 2006 *J. Astrona.* **27** 751 (in Chinese) [吴国强, 孔宪仁, 孙兆伟, 王亚辉 2006 宇航学报 **27** 751]
- [25] Wang Y H, Liu L H, Kong X R 2006 *J. Harbin Inst. Technol.* **38** 708 (in Chinese) [王亚辉, 刘林华, 孔宪仁 2006 哈尔滨工业大学学报 **38** 708]
- [26] Xu N, Li J F, Huang B L, Wang B L 2015 *Chin. Phys. B* **25** 016103
- [27] Shamsa M, Liu W, Balandin A, Casiraghi C, Milne W, Ferrari A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 161921
- [28] Ferrari A C, Libassi A, Tanner B K, Stolojan V, Yuan J, Brown L M, Rodil S E, Kleinsorge B, Robertson J 2000 *Phys. Rev. B* **62** 11089

# Deposition and thermal conductivity of diamond-like carbon film on a silicon substrate\*

Ai Li-Qiang<sup>1)</sup> Zhang Xiang-Xiong<sup>2)</sup> Chen Min<sup>1)</sup> Xiong Da-Xi<sup>2)†</sup>

1) (Department of Engineering Mechanics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

2) (Suzhou Institute of Biomedical Engineering and Technology, Chinese Academy of Science, Jiangsu Key Laboratory of Medical Optics, Suzhou 215163, China)

( Received 16 November 2015; revised manuscript received 5 February 2016 )

## Abstract

Diamond-Like Carbon (DLC) is thought to be a potential material in solving heat dissipation problems in light emitting diode module packages. It is of vital importance in evaluating the thermal conductivity of DLC film deposited on a silicon substrate.

In this paper, the molecular dynamics method is used to simulate the formation of a DLC film by the deposition of carbon atoms on a silicon substrate. Tersoff potential is adopted to reproduce the structures and densities of silicon, carbon, and SiC. A silicon substrate consisting of 544 atoms is located at the bottom of the simulation domain. The substrate is kept at a temperature of 600 K through a Noose-Hover thermostat. Carbon atoms are injected into the substrate individually every 0.5 ps at an energy of 1 eV. After a 7.5 ns deposition process, a 4 nm amorphous film containing 15000 carbon atoms is formed. Injected carbon atoms and substrate silicon atoms are intermixed at the bottom layer of the deposited film while the rest of the film contains only carbon atoms. The density of the film decreases slightly with the increase of the height of the deposited film and the average density is 2.8 g/cm<sup>3</sup>. Analysis of the coordination number shows that the sp<sup>3</sup> fraction of carbon atoms in the film also decreases with the increase of the height of the deposited film, with a maximum value of 22%. It might be caused by the continuous impacts of the subsequently injected carbon atoms on the previously formed DLC film.

The thermal conductivities of the DLC film in the planar and normal directions are calculated by the Green-Kubo method. The thermal conductivity of pure diamond film is also calculated for comparison. The results show that the planar thermal conductivity of the deposited DLC film is approximately half of that of the pure diamond film with the same size. It is higher than the normal thermal conductivity of the deposited film. The thermal conductivities of the DLC film in both planar and normal directions increase with the increase of film density and sp<sup>3</sup> fraction in the DLC film. The results indicate that the local tetrahedral structure of sp<sup>3</sup> carbon atoms contributes to the improvement of thermal conductivity in the DLC film.

**Keywords:** diamond like carbon film, chemical deposition, thermal conductivity, molecular dynamics

**PACS:** 65.80.-g, 71.15.Pd

**DOI:** 10.7498/aps.65.096501

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51376191, 51321002).

† Corresponding author. E-mail: [xiongdax@sibet.ac.cn](mailto:xiongdax@sibet.ac.cn)