

基于原子层沉积的大曲率基底表面薄膜均匀性研究

来邻, 李旸晖, 周辉, 夏浩盛, 刘小煜, 夏成樑, 王乐

中国计量大学光学与电子科技学院, 浙江 杭州 310018

摘要 通过建立原子层沉积(ALD)脉冲气体流场理论模型,分析了沉积过程中前驱体浓度的变化趋势,得到了原子层沉积腔中的优化沉积区域。在此基础上,开展了半球基底上 Al_2O_3 和 TiO_2 薄膜的均匀性实验。实验结果表明,最佳优化区域内 Al_2O_3 和 TiO_2 薄膜的最大非均匀性分别为 1.81% 和 1.74%,相比于非优化区域分别减小了 47.1% 和 50.8%。当入射激光与半球中心轴的夹角为 $\theta=0^\circ$ 时,制备的减反膜反射率在 550 nm 处达到最小值 0.04%, $\theta=60^\circ$ 时反射率最大,为 0.5%,而在其余位置反射率曲线均存在不同程度的偏移,当 $\theta=60^\circ$ 时,偏移最大,为 6 nm。

关键词 薄膜; 原子层沉积; 流场分析; 均匀性; 大曲率基底

中图分类号 O484

文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP55.033101

Study of Film Uniformity on Large-Curvature Substrate Surface Based on Atomic Layer Deposition

Lai Lin, Li Yanghui, Zhou Hui, Xia Haosheng, Liu Xiaoyu, Xia Chengliang, Wang Le

College of Optical and Electronic Technology, China Jiliang University, Hangzhou, Zhejiang 310018, China

Abstract Based on the construction of flow-field theoretical model of pulsed gas in atomic layer deposition (ALD), the variation trend of precursor concentration in the ALD process is analyzed, and an optimized deposition area in the ALD chamber is obtained. Based on this, the uniformity experiment of Al_2O_3 and TiO_2 films on the hemispheric substrate is conducted. The experimental results show that the maximum inhomogeneities of the Al_2O_3 and TiO_2 films in the best optimized area are 1.81% and 1.74%, respectively, which decrease by 47.1% and 50.8%, respectively, compared with those in the unoptimized areas. When the angle θ between the incident laser and the hemispheric central axis is 0° , the reflectivity of the prepared antireflection films at 550 nm reaches a minimum value of 0.04%; when θ is 60° , the reflectivity reaches a maximum value of 0.5%. There exist shifts with different agrees in the reflectance curves at other places, and the shift reaches a maximum value of 6 nm when θ is 60° .

Key words thin films; atomic layer deposition; flow-field analysis; uniformity; large-curvature substrate

OCIS codes 310.1210; 310.1860; 310.6860

1 引言

大曲率光学元件被广泛应用在众多光学系统中,如大曲率反射镜被应用于环形激光器、同步辐射加速器、光学振荡器以及天文望远镜等光学系统中;大曲率透镜不仅可以在投影系统中作为聚光镜使

用,还可以在光学显微镜系统中提高系统分辨率^[1-3]。应用于不同光学系统的大曲率光学元件表面通常需要进行镀膜处理,以满足系统所需的透射率和反射率或偏振特性等要求。薄膜的均匀性是评价薄膜质量与镀膜设备性能的重要指标之一。一些高精度的光学元件对薄膜均匀性要求苛刻,存在均

收稿日期: 2017-09-12; 收到修改稿日期: 2017-09-30

基金项目: 国家自然科学基金(61405183,61575182)

作者简介: 来邻(1993—),男,硕士研究生,主要从事大曲率基底表面薄膜均匀性方面的研究。

E-mail: lailin100@163.com

导师简介: 李旸晖(1985—),女,博士,副教授,主要从事大曲率基底表面薄膜均匀性方面的研究。

E-mail: lyh@cjlu.edu.cn(通信联系人)

匀性缺陷的薄膜将无法保证光学元件达到设计要求,如对于密集波分复用(DWDM)超窄带滤光片,薄膜均匀性的偏差将导致基底不同位置的中心波长发生偏移,滤光片的通带形状发生严重劣化;对于高要求照明系统,薄膜均匀性的偏差将导致照明颜色不均匀,进而减小照明系统的亮度;对于投影镜头,薄膜均匀性的偏差将导致光的透过率减小,产生鬼像等问题^[4-5]。目前,常规的镀膜方式一般是在平面基底、小曲率基底或大曲率基底上进行小角度薄膜沉积,并通过添加修正板、采用行星转动、基底自转等改进方法,修正不同位置薄膜生长差异的情况,从而得到均匀性达到使用要求的薄膜。然而,由于大曲率元件表面的沉积过程较为复杂,简单的修正只能保证较小角度内薄膜的均匀性,薄膜整体仍然存在较大的厚度梯度差。因此,需要通过复杂的计算或建立薄膜沉积模型,以减小大曲率元件表面不同角度薄膜的生长差异^[6-8]。上述方式虽然可以实现大曲率基底表面薄膜的沉积,但薄膜的均匀性最优值在5%左右,相对平面应用时均匀性需达1%以下的要求仍存在较大差距,且对于不同的大曲率光学元件,往往需要重新计算、更改沉积系统机械结构、增加系统复杂性以提高薄膜的均匀性^[9-11]。此方法操作复杂,计算困难,在应用于大曲率光学元件时存在较大的局限性。

大曲率基底表面的薄膜沉积难点主要由存在曲率的基底产生,而原子层沉积(ALD)具有在大曲率基底表面沉积高均匀性的薄膜的潜力。ALD是一种以自限制反应为基础控制单原子层薄膜的厚度,采用逐次循环的方式沉积单原子层的沉积技术^[12-13]。ALD通过调整脉冲时间与清洗时间使薄膜满足饱和和沉积的条件,利用ALD气相沉积的优势,可在深宽比大或表面复杂的器件上制备常规镀膜方式难以制备的薄膜。目前关于ALD的研究,大多是利用ALD成膜的特性在复杂表面进行薄膜沉积,如制备高性能光栅、利用ALD在100 nm~1 μm的颗粒上镀制包覆层、在光电器件表面镀制保护层等^[14-19]。本文利用Fluent软件模拟了ALD沉积过程中前驱体浓度,确定了浓度增大最快的区域作为薄膜沉积优化区域;在优化区域内制备了Al₂O₃/TiO₂薄膜,并在单层膜实验的基础之上,开展了对单点减反射膜均匀性的研究。

2 ALD腔体气体浓度优化区域分析

利用Fluent软件对ALD系统中前驱体传输过

程进行了模拟,并且分析了反应腔中浓度的变化过程。软件通过求解质量守恒方程和动量守恒方程,得出反应腔内某一时间点的压力、前驱体浓度、前驱体流速等物理量,在此基础上,将这些物理量作为下次迭代的初始变量,通过多次迭代得到整个前驱体扩散的过程。其中,质量守恒方程为

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = S_m, \quad (1)$$

式中 ρ 为前驱体与氮气的混合气体密度, \mathbf{v} 为混合气体运动时的速度矢量, S_m 为实验使用的前驱体源与载气源进入的质量, t 为时间。动量守恒方程为

$$\frac{\partial (\rho \mathbf{v})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}^2) = -\nabla p \mathbf{I} + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + \rho \mathbf{g} + \mathbf{F}, \quad (2)$$

式中 p 为前驱体和载气的混合气体的静态压, \mathbf{I} 为单位矩阵, $\boldsymbol{\tau}$ 为混合气体黏性应力张量, $\rho \mathbf{g} + \mathbf{F}$ 为混合气体所受重力和真空泵的吸引力之和, \mathbf{g} 为重力加速度。

2.1 仿真腔体模型的构建

采用半径和高度均为100 mm的柱形反应腔,反应腔内部结构如图1所示,包含反应腔底座、圆环、稳流挡板以及反应腔外腔等4个部分。在薄膜沉积过程中,前驱体从图1(a)所示底座底部的气体入口垂直进入,再通过图1(b)所示均匀分布着数个小孔的圆环状凹槽,最终垂直进入反应腔内部。反应腔中放有图1(c)所示挡板,挡板上有均匀密布的气孔,受挡板的影响,前驱体运动方向由竖直方向快速变为水平方向,受真空泵的影响,前驱体进入挡板后部和圆环状凹槽并从底座气体出口处导出,反应腔内部的气体流动方向如图1(a)中箭头所示。图1(d)所示为反应腔外壁,用于保证系统整体的气密性。由于ALD是低真空系统,计算采用压力入口和压力出口的边界条件^[20-22],并使用压力基求解。实验使用的前驱体均为气体,气体在低真空状况下为黏滞流状态,ALD反应腔中气流的雷诺准数小于1200,因此在计算中选用层流模型。

ALD薄膜沉积通常有两种前驱体,每通入一种前驱体发生一次半反应,前驱体会与基底表面发生基团交换。每次半反应后使用氮气清洗腔体以去除反应腔内残余的前驱体,足够的清洗时间将能保证每个半反应之间互不干扰;每两次半反应为一次循环,每次循环会生成一层单原子层薄膜。实验采用三甲基铝(TMA)和H₂O作为Al₂O₃的前驱体,TiCl₄和H₂O作为TiO₂的前驱体,反应温度均为

120 °C (对应仿真时的腔体温度), 前驱体置于 20 °C 的水冷系统中 (对应仿真时气体进入时的温度)。前

驱体 20 °C 下的饱和蒸气压、黏度和摩尔质量的参数设置见表 1。

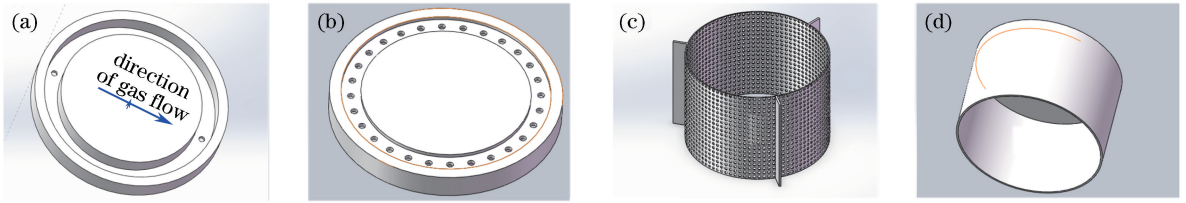


图 1 直径为 100 mm 的柱形反应腔内部结构示意图。(a) 反应腔底座;(b) 圆环;(c) 挡板;(d) 反应腔腔壁

Fig. 1 Internal structural diagram of 100-mm-diameter cylindrical reaction chamber. (a) Pedestal; (b) annular holes; (c) baffle; (d) wall of reaction chamber

表 1 前驱体的饱和蒸气压、黏度和相对分子质量

Table 1 Saturated vapor pressure, viscosity, and relative molecular mass of precursors

Precursor	H ₂ O	TMA	TiCl ₄
Saturated vapor pressure /kPa	2.33	1.12	1.33
Viscosity / (Pa·s)	9.55×10^{-6}	5.00×10^{-6}	8.42×10^{-6}
Relative molecular mass	18.0153	72.0858	189.729

2.2 反应腔浓度优化区域分析

以 TiO₂ 薄膜沉积过程中 TiCl₄ 的物质交换过程为例, 利用 Fluent 软件对反应腔中脉冲时间内前驱体的传输过程进行仿真。图 2 所示为基底置于反

应腔底面时半球基底表面 TiCl₄ 气体浓度变化过程示意图, 其中 D 为位置处浓度与最大浓度之比。从表面无 TiCl₄ 气体 [图 2(a)] 到 TiCl₄ 气体整体浓度达到平衡 [图 2(d)] 需要将近 150 ms。在这 150 ms 内, TiCl₄ 气体浓度从上至下呈逐渐减小的趋势, 如图 2(b)、(c) 所示。前驱体浓度会影响自限制反应达到饱和的时间, 造成半球表面 TiCl₄ 浓度不均的现象, 最终导致沉积之后产生厚度误差。浓度自上而下逐渐降小的梯度分布会导致半球顶部至半球底部的薄膜厚度逐渐减小。因此, 为了提升薄膜的沉积均匀性, 需要研究系统前驱体浓度的变化过程。

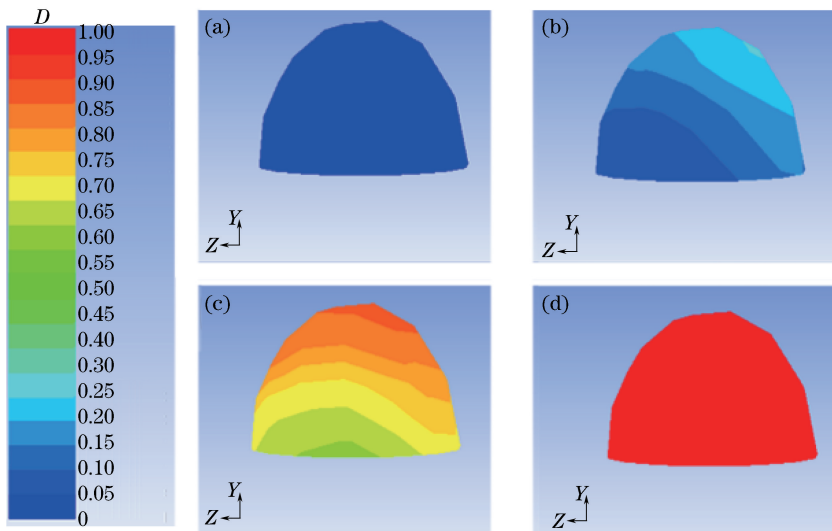


图 2 不同时刻下半球基底表面 TiCl₄ 气体的浓度分布。(a) 100 ms;(b) 150 ms;(c) 200 ms;(d) 250 ms

Fig. 2 Concentration distributions of TiCl₄ gas on hemispheric substrate surface under different moments.

(a) 100 ms; (b) 150 ms; (c) 200 ms; (d) 250 ms

图 3 所示为反应腔内部 TiCl₄、H₂O 和 TMA 气体浓度的变化过程。由图 3(a) 可知, 在前 50 ms 时间内, 前驱体主要从进气口以一定速度垂直进入反应腔, 在极短时间内到达反应腔顶部, 此过程中同时发生气体的水平推移。由图 3(b) 可知, 100 ms 时, 前驱

体进口竖直方向的气体浓度达到稳定状态 (摩尔分数为 3.93×10^{-3}), 前驱体主要受气体出口处真空泵影响而发生水平移动。图 3(c) 所示为 150 ms 时反应腔内部前驱体浓度示意图, 可以看出, 接近反应腔外壁部分的前驱体浓度变化速率明显小于平均速率, 且浓

度变化速率存在梯度变化。由图 3(d)所示的浓度分布可看出,反应腔前部浓度达到饱和,整个浓度变化过程发生在 200 ms 内;250 ms 之后,腔内整体浓度基本达到饱和,前驱体保持定向流动。而对于不同前驱体,相同时间内其浓度分布情况存在差异,这是由于

相同温度下不同前驱体具有不同的饱和蒸气压。 H_2O 的饱和蒸气压明显大于另外两种材料的,因此相同时间内 H_2O 传输更快,能在更短的时间内达到饱和状态。 TMA 的饱和蒸气压与 $TiCl_4$ 的接近,因此 TMA 传输过程与 $TiCl_4$ 基底相似。

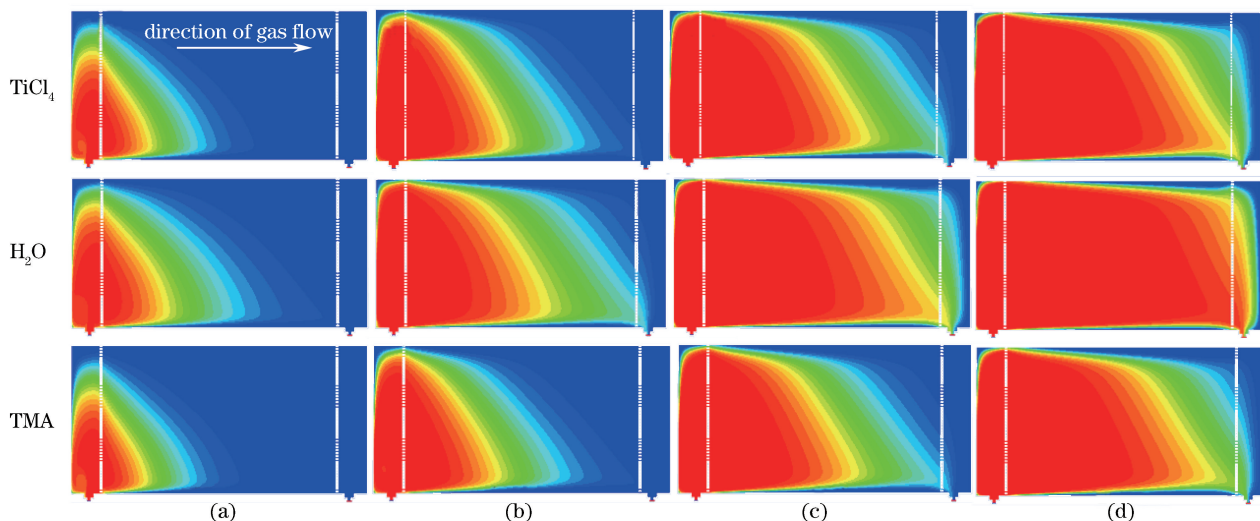


图 3 传输过程中不同时刻各前驱体的浓度分布。(a) 50 ms; (b) 100 ms; (c) 150 ms; (d) 200 ms

Fig. 3 Concentration distributions of precursors at different moments in propagation process.

(a) 50 ms; (b) 100 ms; (c) 150 ms; (d) 200 ms

此外,以 $TiCl_4$ 为例,越靠近反应腔前部, $TiCl_4$ 气体越快达到饱和,且受真空泵的影响越小;贴近反应腔腔体表面出现 $TiCl_4$ 气体浓度突然减小的情况;腔体内部高度为 1.5~2 cm 的 $TiCl_4$ 浓度变化最快,并最先达到稳定状态,远离此段的位置达到饱和所需时间随距离的增大而增大。对于另外两种前驱体,不同前驱体达到饱和所需的时间不同,但浓度变化最快的区域一致。因此,除去腔体内部高度 0~1 cm 之间受腔体表面影响的浓度突变的区域和腔体内部高度在 3 cm 以上前驱体浓度明显递减的区域,腔体内部高度在 1~3 cm 之间的反应区域为沉积优化区域。

3 均匀性实验及结果

根据上述仿真结果,对优化沉积区域开展了实验验证。实验使用芬兰 Beneq 公司生产的 ALD 系统 TFS-200 进行直径为 10 mm 的半球基底表面 TiO_2 和 Al_2O_3 薄膜的沉积实验,材料折射率见表 2。使用日本 Olympus 公司的 USPM-RU 反射率测定仪测量实验样品的反射率曲线,拟合得到薄膜的厚度数据。表 3 所示为实验中两种薄膜使用的前驱体对应的脉冲时间,其清洗时间参数均设置得足够长,以保证脉冲时间段进入腔内的前驱体被充分

清洗,两个相邻脉冲间无相互干扰。

表 2 ALD 沉积材料的折射率

Table 2 Refractive indexes of materials after ALD

Wavelength /nm	400	500	600	700
Refraction index of Al_2O_3	1.639	1.630	1.627	1.626
Refraction index of TiO_2	2.60	2.48	2.36	2.32

表 3 Al_2O_3 和 TiO_2 薄膜的工艺参数

Table 3 Process parameters for Al_2O_3 and TiO_2 films

Film	Precursor	Pulse time /s	Purge time /s
Al_2O_3	TMA	0.5	8
	H_2O	0.5	10
TiO_2	$TiCl_4$	0.43	12
	H_2O	0.5	12

实验中 TiO_2 和 Al_2O_3 的薄膜生长循环次数分别为 1300 和 1000。在薄膜反射率测量过程中,激光沿 θ 为 $0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$ (θ 表示激光与半球中心轴的夹角)的方向入射半球,测量距半球底面高度分别为 5.0, 4.8, 4.3, 3.5, 2.5 mm 处的反射率光谱。测量过程中光线通过圆心,入射角恒为 0° 。为减小测量误差,将选取半球同一高度圆环上多个位置进行反射率测量,多组数据拟合厚度后取平均值作为最终有效值。其中,基底的薄膜非均匀性 μ 由最大非均匀性公式计算^[7],即

$$\mu = (H_{\max} - H_{\min}) / H_{\text{ave}}, \quad (3)$$

式中 H_{\max} 为半球上薄膜最大厚度, H_{\min} 为半球上薄膜最小厚度, H_{ave} 为半球上薄膜厚度的平均值。

3.1 气流方向均匀性实验

根据对仿真结果的分析,进行气流方向的对比实验,气流方向为图 1(a) 箭头所示的方向。在距离气体入口和气体出口 2 cm 的位置放置相同的半球基底。为保证沉积结果不受高度影响,两基底放置高度统一设置为 1 cm,拟合结果如图 4 所示,其中 H_1 和 H_3 表示距离气体进口 2 cm 处的薄膜厚度, H_2 和 H_4 表示距离气体出口 2 cm 处的薄膜厚度, R_1 、 R_2 、 R_3 和 R_4 为相应的归一化厚度。

由图 4 可知, TiO_2 和 Al_2O_3 薄膜具有类似的生长规律,放置在反应腔前部基底上的薄膜生长速率相比于反应腔后部的大。其中 TiO_2 薄膜和

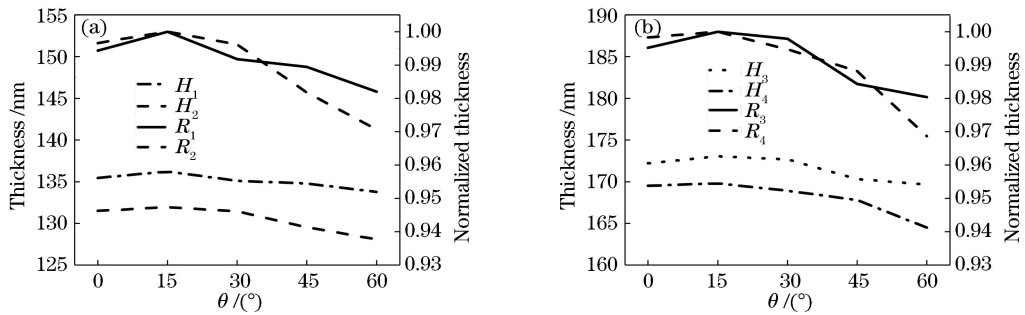


图 4 不同位置处基底表面薄膜厚度的拟合曲线。(a) TiO_2 薄膜;(b) Al_2O_3 薄膜

Fig. 4 Fitting curves of film thicknesses on substrate surface at different places. (a) TiO_2 films; (b) Al_2O_3 films

经计算,前置基底上的 TiO_2 薄膜的最大非均匀性为 1.81%,而反应腔后部基底上的最大非均匀性为 2.97%,相较后部,前置基底的非均匀性减小了 38.9%;反应腔前置基底上 Al_2O_3 最大非均匀性为 1.97%,反应腔后部基底为 3.17%,同比减小了 37.4%。由此可以得出,反应腔前部区域为均匀性较好的优化区域。

3.2 高度方向上的均匀性实验

上述仿真结果表明,距反应腔底部 1~3 cm 位置处的气体浓度变化最快,远离该优化高度区域的前驱体浓度变化速率递减。为验证仿真结果,开展了圆柱形反应腔高度方向上优化区域内外的对比实验。选择距气体进口 2 cm 的位置进行 TiO_2 薄膜的均匀性研究,其中优化区域内选择两个高度,分别为 1 cm 和 2.5 cm,非优化区域选择 0 cm 和 5 cm,结果如图 5 所示。由图 5(a) 的基底表面厚度曲线可知,随着基底高度的增大,薄膜厚度明显增大,而在高度超过 3 cm 之后,厚度无明显增大,这可能是由于 TiO_2 薄膜自限制反应接近饱和,浓度对厚度

Al_2O_3 薄膜在两个半球 $\theta=0^\circ$ 处的厚度偏差分别为 3.6% 和 1.9%。对于相同基底,不同高度上的薄膜非均匀性测试结果表明,当 $\theta < 30^\circ$ 时,基底表面薄膜的厚度偏差较小,非均匀性小于 0.8%;而 $\theta > 45^\circ$ 时,厚度曲线均明显下降,非均匀性明显变大。大角度测试时非均匀性增加,一方面是因为脉冲过程中前驱体浓度存在自上而下逐渐减小的梯度分布,故半球顶部至半球底部薄膜厚度逐渐减小;另一方面可能是由于大角度测量时入射光偏离垂直入射,测试出现误差。其中 TiO_2 的厚度偏差最大值为 2.6%, Al_2O_3 的厚度偏差最大值为 3.2%,除了两种材料生长的非均匀性差异以外, Al_2O_3 材料折射率小,也可能导致测试和拟合中误差的增加。

的影响减弱所致。

经计算,高度为 0, 1, 2.5, 5 cm 的基底表面薄膜厚度 H_5 , H_6 , H_7 , H_8 的最大非均匀性分别为 3.22%, 1.74%, 1.81%, 3.55%,其中非均匀性减小了 50.8%,表明优化区域内薄膜非均匀性明显下降,与仿真结果一致。

Al_2O_3 的实验结果有类似的变化趋势,由图 5(b) 的厚度曲线可看出,同样存在贴近腔体的基底 Al_2O_3 薄膜生长速率明显小于垫高的基底的现象,但不同的是, Al_2O_3 材料在垫高高度超过 3 cm 后,厚度变化仍然明显,这导致 5 cm 处的基底薄膜厚度远大于其他区域,这可能是由于 Al_2O_3 的自限制反应还未完全达到饱和,薄膜厚度持续增大。

在最大非均匀性方面,高度为 0, 1, 2.5, 5 cm 的基底表面薄膜厚度 H_9 , H_{10} , H_{11} , H_{12} 的最大非均匀性分别为 3.42%, 1.81%, 1.98%, 3.17%,非均匀性减小了 47.1%,表明 Al_2O_3 和 TiO_2 两种材料在优化区域内的薄膜生长情况确实明显优于其他高度的,薄膜非均匀性更低。

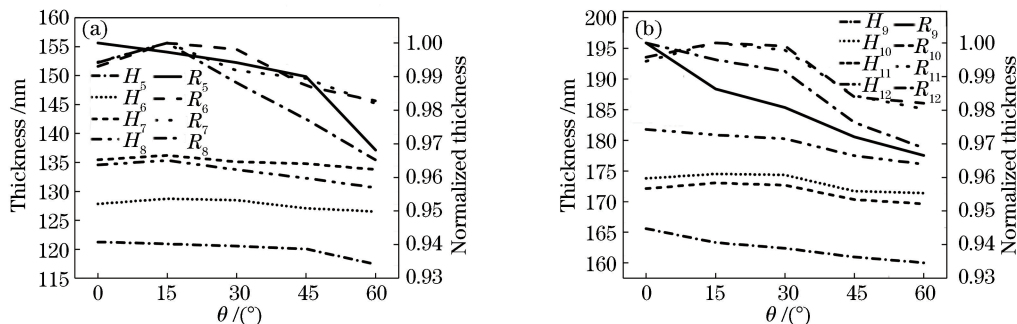


图5 不同高度处基底表面(a) TiO_2 薄膜和(b) Al_2O_3 薄膜的厚度拟合曲线

Fig. 5 Fitting curves of film thicknesses on substrate surface under different heights. (a) TiO_2 films; (b) Al_2O_3 films

3.3 550 nm 单点减反射膜的制备

在上述对 ALD 优化区域的理论和实验研究的基础上,进一步开展了半球基底上多层膜均匀性的实验研究。设计 550 nm 处单点减反射膜,膜系为 39.03 nm TiO_2 /56.46 nm Al_2O_3 /17.87 nm TiO_2 ,设计波形如图 6 实线所示。

膜系沉积之后,使用反射率测定仪对膜系进行反射率测量,各个高度的反射率光谱如图 6 所示,其中插图为波形极值处的放大图。结果表明,当半球 $\theta = 0^\circ$ 时,反射率在 550 nm 处达到最小值,为 0.04%;当 $\theta = 60^\circ$ 时,反射率最大,为 0.5%。在其他位置,薄膜厚度偏差导致反射率曲线存在不同程度的偏移,当 $\theta = 60^\circ$ 时,反射率极值对应波长偏移最大,为 6 nm。

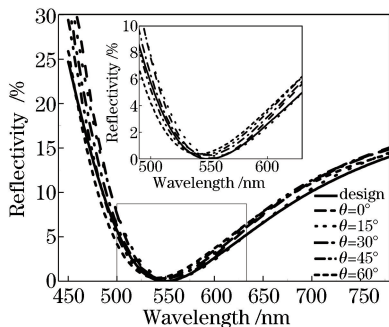


图6 半球反射光谱测试结果

Fig. 6 Test results of hemispheric reflectance spectra

4 结 论

通过仿真确定了 ALD 反应腔中的优化区域,并通过单层膜实验进行了验证,并在优化区域内成功制备了 550 nm 的单点减反射膜,得到如下结论。

1) 优化区域内 Al_2O_3 气流方向上的非均匀性减小了 37.4%,高度方向上的非均匀性减小了 47.1%; TiO_2 气流方向上的非均匀性减小了 38.9%,高度方向上的非均匀性减小了 50.8%,

2) 使用 ALD 进行大曲率镀膜不但具有更好的均匀性,而且无需对设备进行大幅度改动。

3) 在半球表面 550 nm 处实现了减反效果,且反射损耗在 0.5% 以下。

在后续工作中,可在气体浓度仿真的基础上进一步进行前驱体化学反应的仿真,通过化学仿真调整实验参数,增大优化区域的体积,并增大沉积基底的直径,尝试并行沉积多个大曲率元件,更大发挥 ALD 沉积的优势。

参 考 文 献

- [1] Baba M, Sasaki T, Yoshiya M, *et al.* Aberrations and allowances for errors in a hemisphere solid immersion lens for submicron-resolution photoluminescence microscopy[J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 85(9): 6923-6925.
- [2] Menegozzi L N, Lamb W E. Theory of a ring laser [J]. *Physical Review A*, 1973, 8(4): 2103-2125.
- [3] Webster S, Gill P. Low-thermal-noise optical cavity [C]. *Frequency Control Symposium*, 2010: 470-473.
- [4] Gu P F, Li H F, Zhang Y G, *et al.* Uniformity of layer thickness of DWDM filters prepared by ion-beam sputtering and ion-assisted deposition[J]. *Optical Technique*, 2001, 27(5): 410-416.
顾培夫,李海峰,章岳光,等.离子束溅射和离子辅助沉积 DWDM 滤光片的膜厚均匀性[J]. *光学技术*, 2001, 27(5): 410-416.
- [5] Wen P G, Yan Y, Zhang G L, *et al.* Influences of the process on thickness uniformity of films deposited by magnetron sputtering[J]. *Journal of Aeronautical Materials*, 2007, 27(3): 66-68.
温培刚,颜悦,张官理,等.磁控溅射沉积工艺条件对薄膜厚度均匀性的影响[J]. *航空材料学报*, 2007, 27(3): 66-68.
- [6] Bai M S, Li P, Zhang J K, *et al.* Improvement on

- nonuniformity for sphere mirrors with large radius of curvature[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2013, 21(3): 554-560.
- 白满社, 李攀, 张晋宽, 等. 大曲率半径球面反射镜球面误差的改善[J]. *光学精密工程*, 2013, 21(3): 554-560.
- [7] Zhang K, Geng Y Y, Wu Y Q, *et al.* Dependence of optical properties on thickness of Sb_2Te_3 film[J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, 31(12): 1231002.
- 张奎, 耿永友, 吴谊群, 等. 膜厚对 Sb_2Te_3 薄膜光学性质的影响[J]. *光学学报*, 2011, 31(12): 1231002.
- [8] Jin Y L, Qiu Y, Zhao H, *et al.* Deposition of coatings with uniform thickness on large hemispherical substrate [J]. *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology*, 2014, 34(4): 336-339.
- 金扬利, 邱阳, 赵华, 等. 大曲率球形基底表面膜厚均匀性的实现[J]. *真空科学与技术学报*, 2014, 34(4): 336-339.
- [9] Liu Q L, Yang C M, Zhang J F, *et al.* Numerical calculation for optical film-thickness distribution of large curvature spherical accessory[J]. *Journal of Applied Optics*, 2012, 33(6): 1128-1132.
- 刘青龙, 杨崇民, 张建付, 等. 大曲率球面零件光学膜厚分布数值计算[J]. *应用光学*, 2012, 33(6): 1128-1132.
- [10] Ye Z J, Shen W D, Zhang Y G, *et al.* Properties of iridium thin films fabricated by atomic layer deposition[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(10): 1031002.
- 叶志杰, 沈伟东, 章岳光, 等. 原子层沉积制备铱薄膜的特性研究[J]. *光学学报*, 2014, 34(10): 1031002.
- [11] Zhao J L, He H B, Wang H, *et al.* Influence of deposition rate on microstructure and optical properties of mo films fabricated by direct current pulse sputtering [J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(9): 0931001.
- 赵娇玲, 贺洪波, 王虎, 等. 沉积速率对直流脉冲溅射钼薄膜微结构与光学性能的影响[J]. *光学学报*, 2016, 36(9): 0931001.
- [12] George S M. Atomic layer deposition: An overview [J]. *Chemical Reviews*, 2010, 110(1): 111-131.
- [13] Johnson R W, Hultqvist A, Bent S F. A brief review of atomic layer deposition: From fundamentals to applications[J]. *Materialstoday*, 2014, 17(5): 236-246.
- [14] Li Y H, Shen W D, Hao X, *et al.* Rugate notch filter fabricated by atomic layer deposition[J]. *Applied Optics*, 2014, 53(4): A270-A275.
- [15] Weber T, Kasebier T, Szeghalmi A, *et al.* Iridium wire grid polarizer fabricated using atomic layer deposition[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2011, 6(1): 1-4.
- [16] Li Y H, Shen W D, Zhang Y G, *et al.* Precise broad-band anti-reflection coating fabricated by atomic layer deposition[J]. *Optics Communications*, 2013, 292(4): 31-35.
- [17] Pore V, Hatanpää T, Ritala M, *et al.* Atomic layer deposition of metal tellurides and selenides using alkylsilyl compounds of tellurium and selenium[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2009, 131(10): 3478-3480.
- [18] Puurunen R L. Surface chemistry of atomic layer deposition: A case study for the trimethylaluminum/water process[J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(12): 121301-121352.
- [19] Triani G, Evans P J, Mitchell D R, *et al.* Atomic layer deposition of $\text{TiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ films for optical applications[C]. *SPIE*, 2005, 5870: 587009.
- [20] Liu J C. A study on calculation method of vacuum system components gas flow simulation based on FLUENT[D]. Shenyang: Northeastern University, 2010.
- 刘金策. 基于 FLUNET 的真空系统元件气体流动模拟计算方法的研究[D]. 沈阳: 东北大学, 2010.
- [21] Zhang D, He W J, Duan C L, *et al.* Atomic layer deposition process optimization by computational fluid dynamics[J]. *Vacuum*, 2015, 123: 103-110.
- [22] Suh S, Park S, Lim H, *et al.* Investigation on spatially separated atomic layer deposition by gas flow simulation and depositing Al_2O_3 films[J]. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum Surfaces & Films*, 2012, 30(5): 051504.