熱フィラメント法によるダイヤモンド薄膜作製での フィラメント形状効果

小林 和彦**・石黒 謙一**・蔵満 豊**

小原 宏之**・児島 俊弘**・小池 卓郎**

(受理1994年12月15日, 掲載決定1995年3月4日)

The Effect of Hot Filament Geometries on the Growth of Thin Diamond Films

Kazuhiko KOBAYASHI**, Ken-ich ISHIGURO**, Yutaka KURAMITU**

Hiroyuki OBARA**, Toshihiro KOJIMA** and Takuro KOIKE**

(Faculty of Engineering, Tamagawa University, Machida, Tokyo 194)

(Received December 5, 1994, Accepted March 4, 1995)

1. はじめに

我々は熱フィラメント法¹⁾²⁾を用いてダイヤモンド薄膜の作製を試みて来た。フィラメントに板状、コイル状、線状の3種類の形状のものを用い実験を行っているが、いずれの形状での実験でもダイヤモンド薄膜が形成できることを示した³⁾。しかし、作製されたダイヤモンド薄膜はその形状にばらつきが多くまた再現性が悪く、完全なものではなかった。そこで今回は板状のフィラメントについて、基板温度とガス圧力の関係を明らかにすべく、それらの条件を変化させて実験を行い検討を行った。

2. 実験方法

使用する基板は、Si(111)面を0.3 μm 径のダイヤモンドペーストで表面をきずつけ処理をおこなった。原料ガスには、99%水素ガスにメタン1%の混合ガスを用いた。また加熱源であるタングステンフィラメントの形状は、形成膜を比較的広く且つ一様にする目的で、板状のものを用いた。ガス量の調整はガスの流入口で微調整バ

ルプのみで行っていたが、今回はさらにフローメーター、微調整バルブをガスの入、出口につけることにより、より細かな調整を行えるようにした。基板温度は基板側面に接して置いたAr-Cr熱電対で測定し、フィラメント温度は光温度計で測定した。混合ガスは装置の上部からチャンパー全体に導入し、基板下部から排気をおこなっているが、さらに反応促進の目的で、板状フィラメントを基板面に対して垂直に置いて、混合ガスをそのフィラメント面または基板面に、ごく近い距離から直接吹き付けて反応を起こさせる実験も行った。板状フィラメントを基板面に対して垂直におくと一基板面への加熱面積が少なくなり形成膜を広く作る目的には反するようになるが一加熱中でも基板面側または逆側への曲がり無く、フィラメント、基板間の距離が一定に保たれ、基板の表面温度の変動を防ぐ。それらの概略をFig. 1に示す。

3. 実験結果と考察

Fig. 2には、フィラメントー基板間距離:7 mm, 5 mm 幅のタングステン板フィラメント(平面部分を基板面に向ける)、1600°Cから100°Cの間隔で1900°Cまでの各フィラメント温度に対して、図中に示した各ガス圧力(6.65 Pa 間隔)との組み合わせで行った実験での基板表

* 第35回真空に関する連合講演会で講演(平成6年10月)

** 玉川大学工学部(〒194 町田市玉川学園6-1-1)

面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真を示す。反応時間はすべて 2 時間である。基板温度は、それぞれのフィラメント温度に対して、700, 780, 880, 920°C であった。これらの結果より、フィラメント温度が 1600~1800°C の温度での反応ではほとんどの表面には付着物が見られなかった。これはフィラメント温度、基板温度共に低

Fig. 1 Schematic diagram of the position of plate tungsten filament.

く、ガスに反応が起こらなかったものと思われる。フィラメント温度が 1900°C の場合の反応ではすべてのガス圧力の組み合わせで付着物が見られたが、粒状に成長しているのはガス圧力: $\sim 6.65 \times 10^3$ Pa との組み合わせのみであった。SEM 写真からはこれらの粒状のものがダイヤモンドであるとは確認できなかった。Fig. 3 には、フィラメント—基板間距離 7 mm, 2 mm 幅タングステン板フィラメント (平面部分を基板面に向ける)、フィラメント温度 200°C: 基板温度: 850°C, ガス圧力: $\sim 40 \times 10^3$ Pa, 反応時間: 4 時間で作製した膜の SEM 写真を示す。この条件では、SEM 写真から結晶性のある粒子が確認でき、その形からダイヤモンド粒子だと思われる。反応時間を増やせばさらに成長は続くものと予測される。上記の実験条件では、ダイヤモンド状粒子の成長はフィラメント温度が 2000°C の設定温度の場合のみ見られたが、2000°C 以下の温度の場合でも、フィラメント—基板間距離の適当な設定、基板温度または反応時間の増加によってはダイヤモンド薄膜の生成の可能性も考えられるので、今後更に検討する予定である。

次に、反応ガスを直接基板面に吹き付ける方法で、フィラメント温度: 1700°C, 基板温度: 1200°C, ガス圧力: 1.6×10^3 Pa, 反応時間: 30 分, 5 mm 幅のタングステン板フィラメントを基板に対して垂直に置き、フィラ

Fig. 2 SEM images of grown thin films on Si substrates with various filament temperatures and gas pressures.

Fig. 3 SEM images of the grown diamond particles on Si substrates. Filament Temperature: 2000°C Substrate Temperature: 850°C Gas Pressure: 40×10^3 Pa.

メント—基板間距離：5 mm として作製した膜のSEM写真をFig. 4に示す。これらでは、Si基板のかなり広範囲に縞模様状の膜ができ、その表面に多数のボール状の粒子が付着している膜が観察できた。これまでの作製方法ではSi基板表面の変形等は見られなかったが、縞模様の表面が出来たのは直接基板に反応ガスを吹き付けた結果であるのか、フィラメント温度に対して高めの基板温度の影響なのか、また付着している粒子がダイヤモンドなのか、いずれもいまのところ確認できていない。しかし、反応時間が30分と短いにも関わらずこれだけの粒子が成長していることからガス反応がかなり活発に行われていることが予測できる。

4. ま と め

ダイヤモンド薄膜の生成に関して、フィラメント温度とガス圧力に関する実験から、以下のことが分かった。フィラメント温度が1600, 1700, 1800°Cなどのときはガス圧力にかかわらず、基板表面に付着物はほとんどなかった。ダイヤモンド膜の形成にはフィラメント温度は少なくとも1900°C以上の温度が必要であった。板状フィラメントを基板面に対して垂直に置いた効果は、フィラメントの基板面への曲がりではなく、板状フィラメントの平面部分を基板面に向けて加熱した場合や、線状、コイル状のフィラメントの場合に比べて基板温度の変動は

Fig. 4 SEM images of thin films when the reaction gas was introduced directly near the filament. Filament Temperature: 1700°C Substrate Temperature: 1200°C Gas Pressure: 1.6×10^3 Pa.

きわめて少なかった。また、反応ガスを直接吹き付ける結果については、縞模様の模様がSi基板面に現れるような特徴のある変化が見られたのでさらに細かく実験を進める必要がある。

作製されたダイヤモンド薄膜の評価法の一つとして我々は音速に着目している。最近、弾性表面波(SAW)デバイスのマイクロ波帯での応用が研究されるようになり、ダイヤモンド薄膜が次世代の高音速材料として注目されている⁴⁾。この場合、ダイヤモンド薄膜は損失が少なくかつ音速の大きな事が重要である。本研究では、今後、作製されたダイヤモンド薄膜についてその作製条件と高音速性の関係を詳しく検討して、ダイヤモンド薄膜の評価の一つの方法として確立することを計画している。

【文 献】

- 1) S. Matsumoto, Y. Sato, M. Kamo and N. Setaka: Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 21, p. L183-L. 185 (1982).
- 2) 小宮山 宏, 伊原 学, 宮本一夫, 安田哲二:「ニューダイヤモンド」, Vol. 7, No. 3, p14-20 (1991).
- 3) 小林和彦, 石黒謙一, 小原宏之, 兒島俊弘, 小池卓郎: 真空 Vol. 37, No. 3, p. 211-213 (1994).
- 4) 中幡英章, 八郷昭広, 鹿田真一, 藤森直治, 高橋義弘, 梶原隆治, 山本泰司: 第13回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム (USE92) 講演予稿集, P. 271, 仙台 (1992).