



Title	有磁場マイクロ波プラズマCVD法を用いたダイヤモンド薄膜の低温合成に関する研究
Author(s)	屋良, 卓也
Citation	大阪大学, 1995, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39750
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	屋 良 卓 也
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 2 0 5 7 号
学 位 授 与 年 月 日	平 成 7 年 8 月 1 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科 電気工学専攻
学 位 論 文 名	有磁場マイクロ波プラズマCVD 法を用いたダイヤモンド薄膜の 低温合成に関する研究
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 平木 昭夫 教 授 白藤 純嗣 教 授 青木 亮三 教 授 山中 龍彦 教 授 中島 尚男 教 授 佐々木孝友 教 授 村上 吉繁 教 授 熊谷 貞俊 教 授 小牧 省三 教 授 松浦 虔士 教 授 辻 毅一郎 教 授 黒田 英三

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、ダイヤモンド薄膜の低温合成に関する知見を得ることを目的として、有磁場マイクロ波プラズマ気相合成 (CVD) 法を用いたダイヤモンド薄膜合成の低温化に関する研究をまとめたもので、全6章より構成されている。

第1章では、まずCVD ダイアモンドの歴史、形成機構及び評価方法について述べ、次に、既報の低温合成ダイアモンドの研究について紹介している。その上で、CVD ダイアモンドの低温合成を研究する必要性と意義を述べ、本研究の目的を示している。

第2章では、試料作成に用いた有磁場マイクロ波プラズマCVD 法の原理と特長について述べ、ダイヤモンドの低温合成に本方法を用いる意義を示している。

第3章では、様々な反応ガスからダイヤモンドを合成することにより、反応ガス中の構成元素の役割と低温合成に与える影響についての考察を行っている。また、X線光電子分光法 (XPS) によるダイヤモンド薄膜の膜質の量的評価の方法を提案している。また、炭素含有ガスの希釈ガスとして水素に変わって、希ガスを用いる (希ガス系反応ガス) ことで電子密度が上がり、より高速なダイヤモンド成膜が可能になることを明らかにしている。第4章では、まず、ガス温度を下げる手段として有効な低圧CVD の原理について述べ、次いで、低圧下において基板冷却によるダイヤモンドの合成を行い、基板温度200℃で初めてダイヤモンド薄膜が合成できたことを示している。また希ガス系反応ガスをを用いた成膜が、低基板温度においても高速成長に有効であることを明らかにしている。さらに、本研究で新しく開発した基板の前処理法である種付け処理法について述べ、本手法を用いて、初めて基板温度200℃で明確な自形面を持つダイヤモンド薄膜の合成が可能であることを示している。また、種付け処理法が、一般的な傷つけ処理法に比べ、核発生時間の短縮および膜質の向上に優れていることを示し、ダイヤモンドの低温合成に最適の前処理法であることを提案している。

第5章では、ダイヤモンド低温合成の工学的応用として初めて高分子フィルム上へのダイヤモンド薄膜の合成に成功したことを示している。また、ダイヤモンド薄膜の応用が期待されるX線透過窓材に向けた薄膜作成を試みている。

このような工業的応用に基づき、低温合成の有用性を示している。

第6章では、以上で得られた知見を総括し、本論文の結論としている。

論文審査の結果の要旨

ダイヤモンドは工業材料として、高い資質を有し、様々な応用が期待されている。特に薄膜としてのダイヤモンドは電子デバイス、各種基材へのコーティングなどの用途が考えられている。シリコン上への成膜はCVD ダイヤモンド研究の当初から盛んに行われており、比較的容易に密着性良く成膜することが可能である。しかし、ダイヤモンド薄膜成膜時の基板温度は通常800℃～1000℃であり、シリコン以外の材料にこの技術を応用するとしても基板材料はこの温度に耐えなければならない。高い基板温度は基材を制限するのみならず基板構成元素の拡散やダイヤモンドと基材の膨張係数の違いからくる冷却時の膜剥離などの問題点を有している。このような点からダイヤモンド薄膜の実用化に際して基板温度の低温化は非常に重要な課題である。

本研究は主に低温におけるダイヤモンド合成時の問題を探究し、より良質で高速なダイヤモンド薄膜の低温合成に関する研究を行った成果をまとめたもので、その成果を要約すると次の通りである。

- (1) 有磁場マイクロ波プラズマCVD法を用いた三種類のアルコール原料で同一の表面形状を有するダイヤモンド薄膜を作製することによりダイヤモンド薄膜の作製条件が原料ガスに依らず反応ガス中の炭素と水素の比に依存することを明らかにしている。また、得られた薄膜のXPSスペクトルによるC1sスペクトルの半値幅がC/H比に比例することを見だし膜質の定量的評価法提案している。
- (2) CH₃OHと希ガス(He, Ar)の混合ガスから平均結晶子サイズ60Åの微結晶ダイヤモンド薄膜を作製した。また、希ガスを用いることで成膜速度を水素希釈の場合の2～5倍に上げることができることを明らかにしている。
- (3) 500℃以下の低温合成では酸素を反応ガスの20%添加してもダイヤモンド成膜が可能であることを示し、添加量に従ってダイヤモンド薄膜に含有する酸素量が増加することを明らかにしている。
- (4) 基板冷却法によって基板温度200℃でのダイヤモンド薄膜の作製に初めて成功している。
- (5) 基盤温度150℃以下ではポリマーが高速(5～6 μm/h)で成長し、ダイヤモンド薄膜の成長を阻害することを明らかにしている。
- (6) 平均粒径5nmの超微粒子ダイヤモンドを種結晶として用いることにより、基板温度200℃において初めて明確な自形面をもつダイヤモンド薄膜の合成に成功し、種付け処理がダイヤモンドの低温合成に非常に有利であることを明らかにしている。
- (7) 種付け処理法では核発生時間を短縮することが可能であることを明らかにしている。
- (8) 基板温度260℃で高分子フィルム上へのダイヤモンド薄膜の作製に初めて成功している。これは、低融点基板へのダイヤモンドコーティングの応用上、非常に重要な技術である。

以上のように、本論文は、従来のマイクロ波気相成法によるダイヤモンド薄膜では基板温度が1000℃近くの高温成長しかなし得なかったものを有磁場法により200℃以下にまで成長温度を大幅に下げることにより成功し、このダイヤモンド薄膜の工学的応用を多くの分野にまで拡大し得ることを示した。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。