

## 論文内容の要旨

論文題目 High Quality Diamond Film Deposition with Surface-Wave Excited Low Pressure Plasma Process Device

(表面波励起低圧力プラズマプロセス装置を用いた高品質ダイヤモンド薄膜生成)

氏 名 金 載 浩

ダイヤモンド薄膜は物理的、化学的、および電氣的に優れた特性を持ち、様々な工業的な応用が期待されている。1980年代の初め、CVD(Chemical Vapor Deposition)法によりダイヤモンド薄膜が合成された以来、プラズマ CVD 法はダイヤモンド薄膜を合成する方法として多く使われている。プラズマ CVD 法を用いたダイヤモンド薄膜合成は、通常、水素雰囲気でのプラズマで数十 Torr の圧力で行われている。その条件で合成されたダイヤモンド薄膜は多結晶でなっており、薄膜の表面が粗いので薄膜の応用において大きな問題になっている。最近では粒が小さく非常に平坦な表面を持つナノクリスタルダイヤモンド薄膜が注目されている。しかし、信頼できる品質を保ち大面積の平坦なナノクリスタルダイヤモンド薄膜を合成することはまだ大きな課題として残っている。

そこで、最近では、100mTorr 以下でのダイヤモンド薄膜合成が注目されている。そのような低圧力で成膜を行うと数十 Torr で行う場合に比べ次のようなメリットがある。(1)大面積のダイヤモンド薄膜合成が可能になる。(2)ダイヤモンド合成に必要な基板温度が低くなる。(3)中性ガスの温度が低くなり放電容器の壁から不純物の混入が少なくなる。(4)薄膜合成パラメーターの精密な制御が可能になる。(5)薄膜厚みの精密な制御が期待できる。(6)ダイヤモンド核の密度が高くなる。(7)低圧力のプラズマでは様々な測定技術が使えるので薄膜合成原理の解明が期待できる。しかし、このような低圧力ではラズカル密度が低いので膜の成長速度が遅い、また基板に対するイオン衝撃が大きくなるので薄膜のグラファイト化が進み、高品質のダイヤモンド薄膜を合成が困難である。

一方、最近マイクロ波を用いた表面波励起プラズマ(SWP: surface-wave excited plasma)によるプロセスプラズマの研究が注目されている。表面波プラズマは 100mTorr 以下の低圧力で比較的到低電子温度・高電子密度をもつプラズマを発生することができる。現在、表面波プラズマプロセス装置に対する研究においては、低圧力で高密度、高均一のプラズマを発生させるため装置構造およびアンテナを最適化、特性を改善するための放電特性の解明が重要な課題となっている。また、表面波プラズマの特性に最適な反応性プロセスの開発が要求されている。

本研究では、表面波プラズマプロセス装置をダイヤモンド薄膜合成用のプラズマ CVD に応用し、プラズマパラメータの制御を可能として、従来より優れたプラズマ CVD 特性を提供することにより、100mTorr 以下で高品質のナノクリスタルダイヤモンド薄膜を合成することを目的としている。

第 1 章は序論であって、研究の背景、最近注目されている 2.45GHz マイクロ波表面波励起プラズマプロセス装置の原理、100mTorr 以下の低圧力におけるダイヤモンド薄膜生成の特徴、プラズマ CVD 法によるダイヤモンド薄膜合成の原理、および研究の目的について述べている。

第 2 章では、実験方法について述べている。本研究で用いた円形誘電体線路型の平板型表面波励起プラズマプロセス装置の構成と動作原理、シングルプローブ法によるプラズマパラメータ測定の原理、プラズマ発光パターンの観察方法、ダイヤモンド薄膜合成の手順について述べている。

第 3 章では、平板型表面波プラズマ装置における放電特性の解明とダイヤモンド薄膜合成を行っている。まず、既に報告されているアルゴンプラズマにおける本装置の放電特性について簡単に解説した。水素プラズマにおいて、プラズマ発光パターン観察およびプラズマパラメータの測定を行った。それらの結果から、水素プラズマではマイクロ波の電力がスロットが設置されている放電容器の周りに集中し、中央部まで電力が供給できないので、ダイヤモンド薄膜合成が行われる容器中央部の CVD 領域では電子密度がアルゴンプラズマに比べて一桁以下であることが分かった。そのプラズマで合成されたダイヤモンド薄膜は従来のものと同程度の品質にとどまっていることが確認された。また、プラズマパラメータと合成されたダイヤモンド薄膜の比較・検討を行い、数十 mTorr の低圧力で高品質なダイヤモンド薄膜を合成するためのプラズマ特性条件として高密度、低電子温度、および低シース電位が必要であることを実験的に確認した。

第 4 章では、CVD 領域での電子密度を向上させる方法を提案している。放電容器の周りに集中したマイクロ波電力吸収領域が均一にするため、マイクロ波導入用石英窓の内側表面にマイクロ波導入用石英窓の内側表面に特殊な形の薄い導体板を設置した。FDTD(Finite difference time domain)法を元で開発された 3 次元シミュレーションコードを用いて計算した電界分布、実験的に得られたプラズマ発光パターンとプラズマパラメータから導体板の設置により表面波が中央部まで伝搬して、CVD 領域においてより高電子密度のプラズマが得られることが確認された。しかしながら、ダイヤモンド薄膜は合成できなかった。その原因として、設置された導体板が放電容器と電

氣的に接続されていることによりプラズマ空間電位が異常に高くなってアースになっている基板に対するシース電位が高くなったことが考えられる。

第 5 章では、導体板の設置によりプラズマ空間電位が高くなる原因を実験的に解明し、その対策として導体板を放電容器から電氣的に浮遊させる方法を提案している。その方法によりプラズマ空間電位と電子温度が低くなった。また CVD 領域における電子密度がより高くなった。そのプラズマにより 30mTorr のガス圧力で表面がより平坦で高粒子密度のナノクリスタルダイヤモンド薄膜の合成された。

第 6 章では、表面波プラズマに直流電流を重畳する方法を提案している。石英窓の内側表面に設置した導体板とアースになっている容器内壁との間に負の直流電圧を印加した。その結果、CVD 領域においてより高電子密度、低電子温度、および低プラズマ空間電位が得られた。また、前章で報告したものよりも高品質のナノクリスタルダイヤモンド薄膜が比較的的高速で合成された。

第 7 章では、前章にて得られた直流電流を重畳することによるプラズマパラメーターの制御に関して、1 次元プラズマ理論モデルを提案している。プラズマから電極に流れるネット電流によるプラズマ空間電位の変化を計算する簡単なプラズマ理論モデルを開発している。この理論モデルにおけるプラズマは実験結果を元に三つの領域、すなわち誘電体付近で表面波により局所化され高い電子温度を持つプラズマ領域、CVD 領域であるバルクプラズマ領域、およびこれらの二つ領域間の転移プラズマ領域で構成される。電極の面積比および直流電圧の変化に対して計算したプラズマ空間電位の変化が実験結果とよく一致していることが確認された。

第 8 章では、本論文の成果をまとめている。