

# 沉积参数对 CVD 金刚石晶粒尺寸的影响\*

陈广超<sup>†</sup> 兰 昊 李 彬 戴凤伟 Askari J 黑立富 宋建华  
李成名 唐伟忠 佟玉梅 吕反修

(北京科技大学, 北京 100083)

**摘要:** 采用 DC Arc Plasma Jet CVD 方法制备了金刚石自支撑膜体, 考察了温度分布、沉积腔压和  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  等沉积参数对所制备金刚石膜体中的晶粒尺寸的影响. 实验发现沿温度降低的方向和增加腔压会使晶粒尺寸变大, 当  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  超过 15% 后, 有带刻面的晶粒出现. 本次实验最大的晶粒对角线长度超过 1mm.

**关键词:** 金刚石; 晶粒尺寸; 等离子体喷射 CVD

**PACC:** 8115H; 8160C

**中图分类号:** TN304. 055

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2007)S0-0348-04

## 1 前言

CVD 金刚石已经在许多方面具有和天然金刚石一样的性能, 而且 CVD 金刚石可以进行大面积制备, 因此, 成为在极端条件下使用的理想材料, 比如导弹侧窗/头罩、高功率电子器件、MEMS 和 SAW 的基材等<sup>[1~4]</sup>. 目前, 有两个主要问题阻碍发展着 CVD 金刚石应用: 低的强度(相对于天然金刚石)和不容易得到光滑表面. 在强度研究中, Lü 等人<sup>[5]</sup>发现膜体强度与膜体中的晶粒存在 Hell-Patch 关系; 在获得光滑表面的研究中, Xin 等人<sup>[6]</sup>开发了纳/微米复合结构. 这些结果表明: 膜体中的晶粒对性能有着重要的作用. DC Arc Plasma Jet CVD 具有极高的生长速度, 但是, 在这项技术的研究中, 很少有关于影响晶粒尺寸的研究, 所以, 在本篇论文中我们列举了这方面的工作.

## 2 实验

所用样品都是在自制的 30kW DC Arc Plasma Jet CVD 系统中制备的, 我们以前报道过该系统<sup>[7]</sup>. 反应气体是  $\text{Ar}/\text{CH}_4/\text{H}_2$  的混合气, 其中  $\text{H}_2$  为 6slm,  $\text{Ar}$  为 2slm,  $\text{CH}_4$  最大为 1.5slm. 基材是  $\Phi 50 \times 5\text{mm}^3$  的多晶 Mo, 沉积前用  $40\mu\text{m}$  粒度的金刚石粉研磨, 之后先用丙酮超声清洗, 然后再用去离子水超声清洗, 放入沉积腔前风干. 沉积温度采用红外高

温测量仪测试. 所制备试样用扫描电镜(SEM, LEO 1450 和 XL30 S-FEG)观察.

## 3 结果与讨论

在基材台不同位置进行了沉积, 所得样品的形貌如图 1 所示. 从中可以看到, 晶粒尺寸随离开中心的距离加大而变大, 其中最大的晶粒对角线距离超过 1mm.

晶粒尺寸与腔压的关系也可以通过图 2 进行观察. 从中可以看到, 随着腔压的变大, 晶粒尺寸也变大, 并且晶粒具有更好的刻面.

图 3 是膜体表面形貌与  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  的关系. 从中可以看到, 表面形貌在所考察的比率范围内出现了反复, 更奇怪的是在 20% 的比率条件下竟然出现了带有完好刻面的晶粒.

我们沿基材台径向测量了温度, 结果示于图 4. 可以看到不同的沉积位置对应的沉积温度不同, 从中心向边缘, 温度逐渐减低. 根据这个结果和图 1 的结果, 我们认为晶粒沿温度降低的方向尺寸变大. 这一点和文献[8]中的观点一致.

$\text{CH}_4/\text{H}_2$  超过 5% 后, 极易出现包含纳米金刚石的“菜花”形貌, 在 15% 的情况下, 唐伟忠等人<sup>[9]</sup>得到了纳米金刚石, 其形貌与本实验结果相同, 但遗憾的是作者没有讨论更高比率的情况, 所以, 到目前为止, 本文还是第一个报道大比率条件下得到金刚石晶体.

\* 国家高技术研究发展计划(批准号: 2002AA305508), 国家自然科学基金(批准号: 50472095), 教育部留学基金(批准号: 2003-14), 北京科技新星计划(批准号: 2003A13)和北京市自然科学基金(批准号: 2062015)资助项目

<sup>†</sup> 通信作者. Email: guangchaochen@mater.ustb.edu.cn

2006-12-12 收到, 2006-12-21 定稿

©2007 中国电子学会

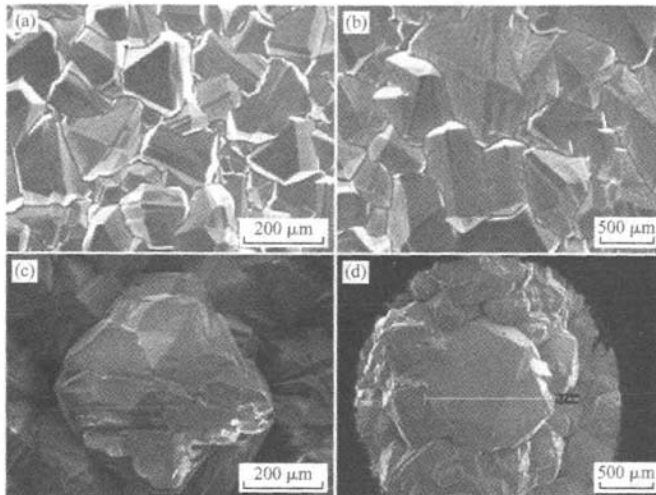


图 1 不同沉积位置的晶粒尺寸比较 (a)中心;(b)离开中心 1cm 处;(c)离开中心 2cm 处;(d)离开中心 2.5cm 处

Fig.1 Grain size at different positions of substrate holder (a) Center;(b) 1cm away from center;(c) 2cm away from center;(d) 2.5cm away from center

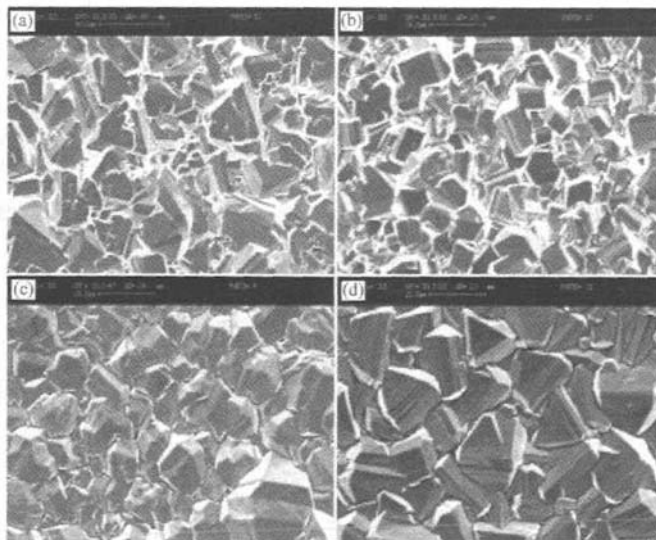


图 2 不同腔压时的晶粒尺寸比较 (a)2kPa;(b)4kPa;(c)6kPa;(d)8kPa

Fig. 2 Grain size under different chamber pressures (a) 2kPa;(b) 4kPa;(c) 6kPa;(d) 8kPa

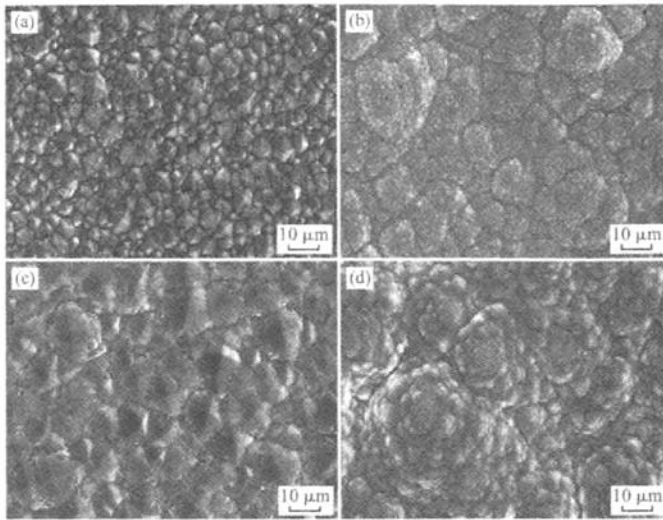


图 3 不同  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  比率的晶粒尺寸比较 (a)5%;(b)15%;(c)20%;(d)25%  
Fig. 3 Grain size dependence on ratio of  $\text{CH}_4$  to  $\text{H}_2$  (a)5%;(b)15%;(c)20%;(d)25%

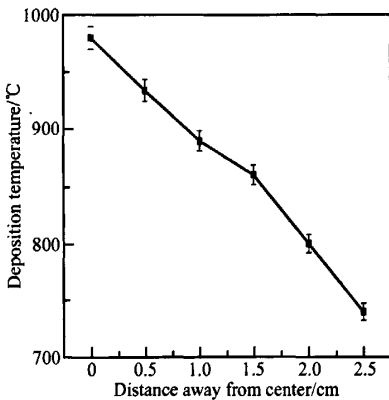


图 4 基材台上的温度分布  
Fig. 4 Measured temperature versus distance away from center of substrate holder

## 4 结论

考察了 DC Arc Plasma Jet CVD 中温度分布、沉积腔压和  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  等沉积参数对所制备金刚石膜体中的晶粒尺寸的影响. 实验发现, 沿温度降低的方向和增加腔压会使晶粒尺寸变大, 当  $\text{CH}_4/\text{H}_2$  超过 15% 后, 有带刻面的晶粒出现. 本次实验最大的晶粒对角线长度超过 1mm.

## 参考文献

- [1] Klein C A. Diamond windows and domes; flexural strength and thermal shock. *Diamond and Related Materials*, 2002, 11, 218
- [2] Jagannadham K. Multilayer diamond heat spreaders for electronic power devices. *Solid-State Electron*, 1998, 42, 2199
- [3] Salvadori M C, Martins D R, Mansano R D, et al. Diamond microstructures fabricated using silicon molds. *J Vac Sci Technol A*, 2005, 23, 1575
- [4] Jagannaclham K, Lance M J, Watkins T R. Growth of diamond film on single crystal lithium niobate for surface acoustic wave devices. *J Vac Sci Technol A*, 2004, 22, 1105
- [5] Lü F X, Tang W Z, Zhong G F, et al. Economical deposition of a large area of high quality diamond film by a high power DC arc plasma jet operating in a gas recycling mode. *Diamond and Related Materials*, 2000, 9, 1655
- [6] Xin H W, Zhang Z M, Ling X, et al. Composite diamond films with smooth surface and the structural influence on dielectric properties. *Diamond and Related Materials*, 2002, 11, 228
- [7] Zhou Z Y, Chen G C, Lu F X, et al. OES study in controlling diamond film growth by high power DC arc plasma jet CVD. *Chinese Physics*, 2006, 15, 980
- [8] Chen G C, Wen L S, Huang R F, et al. High oriented diamond film deposited by separating methane and hydrogen fed gases. *J Mater Res*, 1999, 14, 3196
- [9] Tang W Z, Zhu C, Yao W, et al. Nano crystalline diamond films produced by direct current arc plasma jet process. *Thin Solid Films*, 2003, 429, 63

## Influence of Deposition Parameters on Diamond Grain Size in DC Arc Plasma Jet CVD\*

Chen Guangchao<sup>†</sup>, Lan Hao, Li Bin, Dai Fengwei, Askari J, Hei Lifu, Song Jianhua,  
Li Chengming, Tang Weizhong, Tong Yumei, and Lü Fanxiu

(University of Science and Technology of Beijing, Beijing 100083, China)

**Abstract:** Deposition parameters, like deposition distribution, chamber pressure, and ratio of  $\text{CH}_4/\text{H}_2$ , are studied to influence grain size of diamond by DC Arc Plasma Jet CVD. It is found that increase of grain size will occur under the condition of decrease of deposition temperature and increase of chamber pressure. The largest grain size is found over 1mm. Crystalline grain with facets occurs at 20% of  $\text{CH}_4/\text{H}_2$ .

**Key words:** diamond; grain size; plasma jet CVD

**PACC:** 8115H; 8160C

**Article ID:** 0253-4177(2007)S0-0348-04

\* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2002AA305508), the National Natural Science Foundation of China (No. 50472095), the China Scholarship Program (No. 2003-14), the Beijing Municipal Natural Science Foundation (No. 20062015), and the Scientific and Technologic Program for New Stars of Beijing (No. 2003A13)

<sup>†</sup> Corresponding author. Email: guangchaochen@mater.ustb.edu.cn

Received 12 December 2006, revised manuscript received 21 December 2006

©2007 Chinese Institute of Electronics