

高质量高取向(100)面金刚石膜的可控性生长

刘聪 汪建华 翁俊

Preparation of the high-quality highly (100) oriented diamond films with controllable growth

Liu Cong Wang Jian-Hua Weng Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 028101 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.028101

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.028101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I2>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

锌添加对大尺寸金刚石生长的影响

Effect of additive zinc on larger diamond crystal growth

物理学报.2014, 63(24): 248104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.248104>

高温高压下掺硼宝石级金刚石单晶生长特性的研究

Studies on synthesis of boron-doped Gem-diamond single crystals under high temperature and high pressure

物理学报.2014, 63(19): 198101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.198101>

氮氢共掺杂金刚石中氢的典型红外特征峰的表征

Characterization of typical infrared characteristic peaks of hydrogen in nitrogen and hydrogen co-doped diamond crystals

物理学报.2014, 63(4): 048101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.048101>

国产六面顶压机多晶种法合成宝石级金刚石单晶

Synthesis of gem diamond crystals by multiseed method using China-type cubic high-pressure apparatus

物理学报.2013, 62(18): 188103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.188103>

高能电子照射对金刚石中缺陷电荷状态的影响

Effect of high-energy electron exposure on the charge states of defects in diamond

物理学报.2013, 62(18): 188101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.188101>

高质量高取向(100)面金刚石膜的可控性生长^{*}

刘聪¹⁾ 汪建华^{1)2)†} 翁俊¹⁾²⁾

1) (武汉工程大学, 湖北省等离子体化学与新材料重点实验室, 武汉 430073)

2) (中国科学院等离子体物理研究所, 合肥 230031)

(2014年7月16日收到; 2014年9月10日收到修改稿)

应用微波等离子体化学气相沉积技术, 在低气压下对(100)晶面金刚石膜的表面形貌、质量、取向和生长率进行了可控性生长研究. 结果表明: 基片温度与甲烷浓度对(100)晶面金刚石膜的生长存在耦合规律. 为了获得表面形貌相似的(100)晶面金刚石膜, 在沉积过程中, 增加碳源浓度的同时需要同时升高基片温度; 当甲烷浓度为3.0%, 基片温度从740 °C上升至1100 °C的过程中, 金刚石膜的晶面取向变化可分为五个阶段, 其中当基片温度在860 °C至930 °C时, 很适合高取向(100)晶面金刚石膜生长; 另外, 金刚石膜的质量和生长速率分别与基片温度和甲烷浓度成正比. 为了获得高质量高取向(100)晶面金刚石膜, 应当选择合适的基片温度和甲烷浓度.

关键词: 金刚石膜, 化学气相沉积, 取向, 质量

PACS: 81.05.ug, 81.15.Gh, 81.10.Aj

DOI: 10.7498/aps.64.028101

1 引言

众所周知, 化学气相沉积(CVD)金刚石具有优良的物理化学性质, 在已知的所有自然界物质中, CVD金刚石具有超高的硬度和热导率、最快的声波传播速率、低的摩擦系数、极低的热膨胀系数、宽的带隙、高的红外透过率以及良好的化学惰性^[1]. 同时, 它具有很高的空穴迁移率以及掺杂诱导的半导体特征. CVD金刚石集多种优异性质于一身, 使其在众多领域具有广阔的应用, 比如机械加工、表面涂层、光学窗口及微电子器件等领域^[2]. 然而, 目前大多数人工合成的金刚石膜具有杂质缺陷含量较高, 晶面取向多为任意取向, 从而严重制约了金刚石膜在众多领域的应用, 特别是在微电子学领域的应用, 使其电学性能受到极大的限制^[3]. 因此, 如何制备缺陷浓度低、取向好, 甚至达到最高质量的IIa型天然金刚石乃至单晶膜, 一直是国内外学者研究的重点^[4].

由于(100)取向金刚石膜与其他晶面取向如

(110)和(111)相比, 具有较低的表面粗糙度、较少的缺陷杂质及较小的应力、较高的热导率及较大的载流子收集空间^[5], 因而具有高取向(100)面的金刚石膜可以进一步提高金刚石在其众多领域的应用.

近几年来, 国内外许多学者对(100)面取向生长的金刚石膜进行了大量的研究. 其中部分文献报道了应用热丝化学气相沉积法(HFCVD)制备高取向(100)面金刚石膜, 李灿华等^[6]应用热丝化学气相沉积技术, 以CH₄/H₂/N₂为主要气源, 通过改变氮气浓度, 研究了氮气氛围下(100)金刚石膜的生长, 研究发现, 适量的氮气不仅可以提高金刚石的生长速率, 而且还可以沉积出具有(100)面取向的金刚石膜. 由于电极污染, 所以制备出的金刚石膜杂质含量较高, 导致其电阻率很低, 严重影响了其电学性能^[7]. 而微波等离子体化学气相沉积(MPCVD)具有无极放电、等离子体密度高、均匀性可控等优点^[8], 从而制备出的金刚石膜纯度高. 因此, 国内外学者大都采用MPCVD法进行金刚石膜的沉积研究. Paritosh等^[9]采用MPCVD法, 通过

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 11175137)和武汉工程大学研究基金(批准号: 11111051)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: wjhwz@126.com

对沉积金刚石膜理论与实验上的分析研究, 提出了金刚石膜取向生长变化模型, 根据这个模型可以认为, 金刚石膜的不同晶面生长速率快慢受 α 参数的控制, 其中 α 参数是指金刚石(111)面生长速率与(100)面生长速率之比, 而 α 参数可由沉积过程中的工艺参数进行控制. 王兵等^[10]应用微波等离子体化学气相沉积系统, 采用形核-刻蚀-生长-刻蚀-生长循环沉积工艺, 制备出了品质较高的(100)面金刚石膜. 然而其生长过程较为复杂, 沉积时间较长, 不利于工业化推广. 随后, 孙祁等^[11]在自主研发的MPCVD装置上, 研究了甲烷浓度对生长(100)面金刚石膜的影响, 发现高甲烷浓度有利于(100)面金刚石膜生长, 但是所制备出的(100)面金刚石膜还存在其他晶面取向, 同时对高取向(100)面生长的可控性较差.

以上在制备(100)面金刚石膜时, 主要是通过改变一个工艺参数或沉积工艺来进行研究分析, 而通过改变多个工艺参数, 并提出参数间的耦合作用对(100)面金刚石膜的生长影响尚未见报道. 本文在此基础上, 应用MPCVD装置所特有的基片温控系统, 在较低工作气压下, 通过控制基片温度和甲烷浓度, 实现了对高质量高取向(100)面金刚石膜的可控性生长, 而且重复性较好. 同时, 得出了基片温度和甲烷浓度对生长高质量高取向(100)面金刚石膜具有耦合作用, 且这种作用较为明显.

2 实验

本实验在型号为SM840E微波化学气相沉积装置上进行, 最大输出功率为2 kW. 实验中所采用的基片为镜面抛光p型(100)取向单晶硅. 主要反应气体为CH₄和H₂, 引入辅助气体为O₂.

2.1 基片预处理

由于金刚石很难在镜面抛光的硅片上形核, 所以在沉积之前, 首先对基片进行预处理. 其预处理的具体步骤为: 先用粒径为500 nm的金刚石粉进行研磨35 min, 然后将研磨好的硅片依次用丙酮和乙醇溶液进行超声清洗30 min, 最后用去离子水进行漂洗, 将清洗干净的硅片进行烘干后放入腔体进行下一步操作.

2.2 形核与生长

在金刚石膜沉积过程中, 我们采用两步法进行

沉积. 第一步为形核过程, 该过程以CH₄/H₂为反应气体, 其形核参数如下, 甲烷流量为8 sccm (1 sccm = 1 mL/min), 氢气流量为200 sccm, 微波输入功率1300 W, 沉积气压为3.1 kPa, 基片温度大约为800 °C, 形核时间为35 min. 第二步为生长过程, 该步骤以CH₄/H₂/O₂为反应气体. 在该过程中, 其固定参数如下, 氢气流量为200 sccm, 辅助气体氧气流量为1.6 sccm, 微波输入功率1300 W, 沉积气压为3.5 kPa, 生长时间为6 h, 其他工艺参数如表1所示. 实验时, 我们采用装置所特有的基片温控系统, 从而可以实现在较低气压或较低功率下获得较高的基片温度, 同时还可以实现对基片温度可控.

表1 金刚石膜形核及生长工艺参数

样品	CH ₄ /Vol. %	基片温度/ °C
a	3.0	780
b		880
c		980
d		780
e	4.5	880
f		980

应用红外测温仪通过观察窗进行基片温度测量. 采用扫描电子显微镜(SEM, JSM-5510LV, Japan)得到沉积膜的表面形貌、晶粒尺寸和断面等信息. 对沉积得到的金刚石膜用RM-1000型(Raman, DXR, USA)激光拉曼光谱仪进行拉曼谱分析, 用来分析样品成分. 用D/max-rA型X射线衍射仪(XRD)来表征金刚石膜的晶面取向.

3 结果与讨论

3.1 基片温度和甲烷浓度对金刚石膜表面形貌的影响

沉积得到的金刚石膜表面形貌如图1所示. 在甲烷浓度为3.0%时, 当沉积温度为780 °C时, 金刚石膜的表面形貌主要由较小的立方晶粒组成, 同时晶粒之间伴随有晶粒团聚现象(如图1(a)所示); 当沉积温度为880 °C时, 沉积得到的金刚石膜的晶粒尺寸明显增大且表现出较好的晶面形貌, 其晶面取向具有高度的(100)面取向(如图1(b)所示); 当沉积温度上升至980 °C时, 沉积得到的金刚石膜表面形貌并没有太明显的变化, 其表面形貌仍由较小的立方晶粒组成. 这种现象说明在中等甲烷浓度

时, 金刚石膜的表面形貌对基片温度并不敏感. 同时这种现象也表明, 在中度甲烷浓度下, 工艺参数有较宽的选择范围以沉积得到具有相似表面形貌的金刚石膜(如图 1(c) 所示).

在高甲烷浓度为 4.5%、沉积温度为 780 °C 时, 金刚石膜的表面形貌展现出独特的菜花状结构(如图 1(d) 所示), 这些“菜花状”组织与唐伟忠等^[12]得到的结果相一致, 他们认为这些组织是由于大量晶粒尺度在几十纳米的金刚石颗粒团聚起来形成的. 当沉积温度为 880 °C 时, 金刚石膜的表面形貌主要由较小的立方晶粒组成, 同时团聚组织明显减少(如图 1(e) 所示). 当温度上升到 980 °C 时, 沉积所得到的金刚石膜表面形貌显露出大小不一的立方晶粒, 有少量晶粒尺寸在 3 μm 左右, 其他晶粒尺

寸在 1 μm 左右(如图 1(f) 所示). 众所周知, 在高甲烷浓度和较低的沉积温度下, 很容易观察到二次形核现象. 在本文实验条件下, 沉积温度主要由基片自加热系统控制. 因此在一定程度上, 基片温度的升高意味着等离子体中活化基团含量的增加^[13]. 与这种反应行为相应的现象是对非金刚石相进行刻蚀的强度增加以及晶粒生长速率的加快. 当甲烷浓度升高至 4.5% 时, 在基片温度从 780 °C 升高至 980 °C 的过程中, 沉积得到的金刚石膜表面形貌表现出明显的变化. 这种现象说明在高甲烷浓度时, 金刚石膜的表面形貌对基片温度比较敏感. 同时这种现象也表明, 在甲烷高浓度下, 沉积得到具有高取向(100)晶面的金刚石膜时, 其基片温度的选择范围较小.

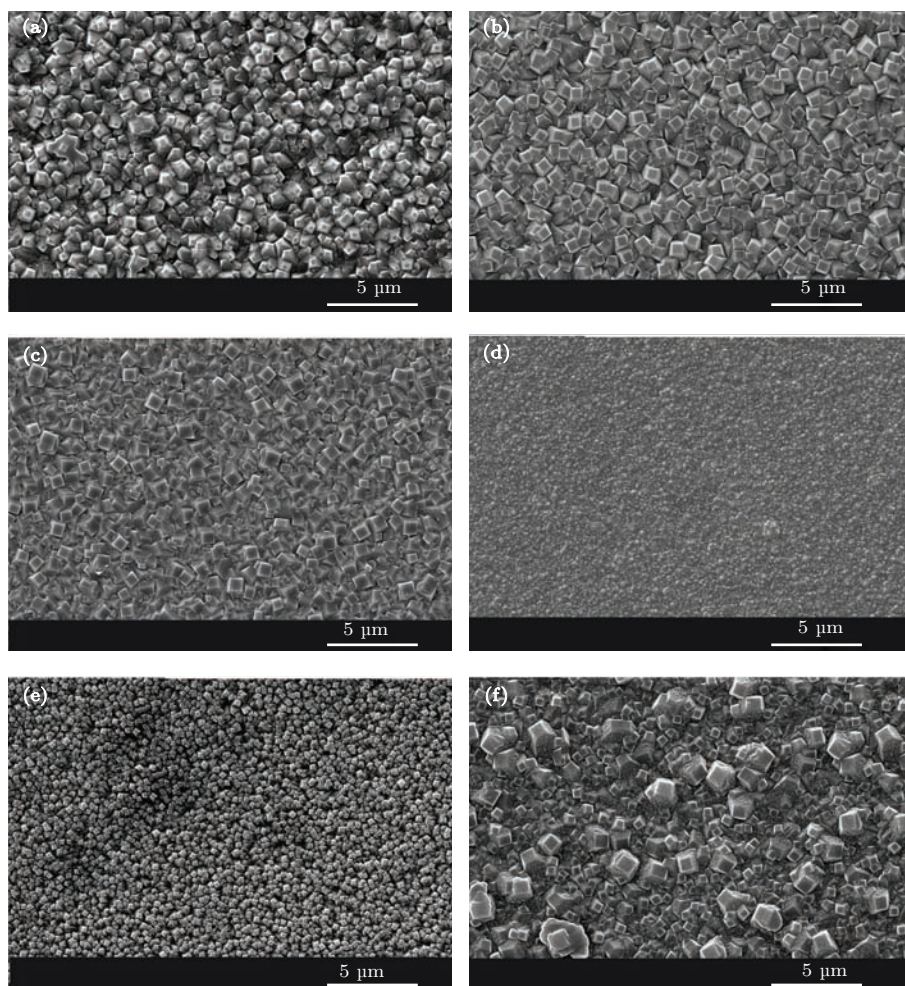


图 1 不同工艺参数下沉积得到的金刚石膜 SEM 表面形貌图 (a)—(c) CH_4 浓度为 3.0% 时, 基片温度分别为 780 °C, 880 °C 和 980 °C; (d)—(f) CH_4 浓度为 4.5% 时, 基片温度分别为 780 °C, 880 °C 和 980 °C

当保持基片温度不变而只保持甲烷浓度变化时, 也同样能观察到金刚石膜表面形貌和所呈现晶面变化. 特别是当基片温度为 880 °C 时, 随着甲烷

浓度的增加, 虽然金刚石膜都表现出(100)晶面(如图 1(b), (e) 所示), 但是其晶粒尺寸明显不同. 这一结果说明在该基片温度下, 甲烷浓度的变化充分改

变了 α 参数,从而可以较为容易地观察到金刚石膜表面形貌的变化.但不可否认的是,当基片温度一定时,甲烷浓度的变化可能会对金刚石膜的取向、质量、形核密度和生长速率等产生重大影响.

对金刚石膜的表面形貌的观察发现,基片温度和甲烷浓度似乎表现出一种相互耦合的效应.一些前期的研究报道指出,在金刚石膜沉积的早期阶段,碳原子会出现明显的团聚现象,而同时由于表面能的增强和[H]基团对 sp^2 相的刻蚀,键结构会逐渐从 sp^1 结构转换到 sp^2 结构并最终成为 sp^3 结构.同时基片温度的升高也会引起表面反应速率和吸收基团迁移率的增加,其结果将导致表面过饱和度的降低^[14].因此,在金刚石膜的沉积过程中,为了使金刚石膜保持相似的表面形貌,在增加甲烷浓度的同时需要同时升高基片温度.图1(a)和(e)对上述结论做出了较好的佐证,在甲烷浓度为3.0%,基片温度为780 °C和甲烷浓度为4.5%,基片温度为880 °C时分别得到了表面形貌相似的金刚石膜,同时表面形貌都展现出高取向(100)晶面.

3.2 基片温度和甲烷浓度对金刚石膜质量的影响

图2为样品a—f的拉曼光谱图.金刚石特征峰位于 1332.1 cm^{-1} , $1350\text{--}1600\text{ cm}^{-1}$ 附近拉曼散射则是膜层的晶界处存在非晶碳和 sp^2 结构所致.根据各散射峰的位置及相对强度,可以从它们的变化判断出金刚石膜的组成和质量优劣.通过图2中谱线比较,可以发现,在金刚石膜生长过程中,随着基片温度和甲烷浓度变化时,各散射峰都在各自范围内变化.

从图中可以看出,甲烷浓度一定,金刚石膜的质量随着基片温度的上升而逐渐升高.其原因可能是在较高的基片温度下,可以使碳氢化合物在等离子体中被充分地离化并有效地形成了 sp^3 结构,从而大大提高了金刚石相的含量^[15].同理,基片温度一定,金刚石膜的质量随着甲烷浓度的上升而逐渐降低,其可能的原因是在较高的甲烷浓度下,在气相中形成的碳氢化合物促进了无定形碳的形成,而随着甲烷浓度的降低,等离子体中的[H]基团对非金刚石相的刻蚀也随之增强^[16,17].对于样品d—f,可以清楚地观察到在 1332.1 cm^{-1} 处和 $1350\text{--}1600\text{ cm}^{-1}$ 处分别存在明显的金刚石特征峰以及展宽的非金刚石特征峰. Lai等^[18]也在不同的沉积时间下观察到了类似的结果.

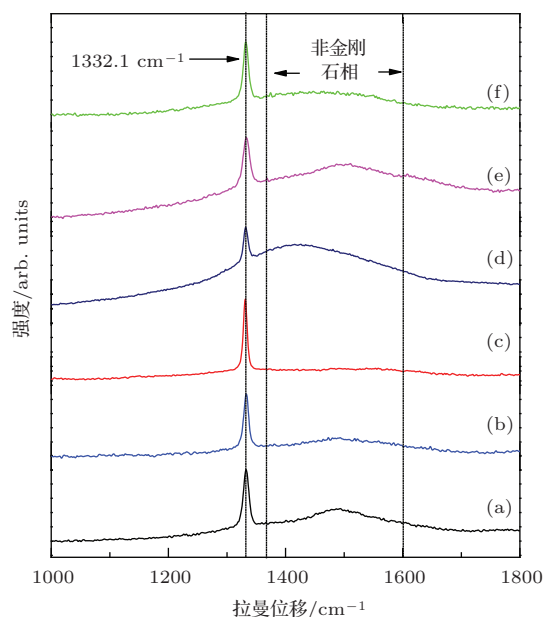


图2 不同基片温度和甲烷浓度下沉积的金刚石膜 Raman 光谱 (a)—(c) CH_4 浓度为 3.0% 时, 基片温度分别为 780 °C, 800 °C 和 980 °C; (d)—(f) CH_4 浓度为 4.5% 时, 基片温度分别为 780 °C, 880 °C 和 980 °C

3.3 基片温度和甲烷浓度间的耦合效应对金刚石膜取向的影响

本文着重对样品a—f的晶面取向进行了XRD表征分析,结果如图3所示.由图可以看出,金刚石的X射线衍射角 2θ 为 43.9° , 75.3° , 91.5° 和 119.6° ,分别对应的金刚石生长取向特征峰为(111)面特征峰、(220)面特征峰、(311)面特征峰和(400)面特征峰.图中金刚石膜同时出现(111), (220), (311), (400)4个特征峰,表明金刚石膜为多晶织构.特别地,样品f在 43.9° 和 119.6° 处分别显示出(111)面

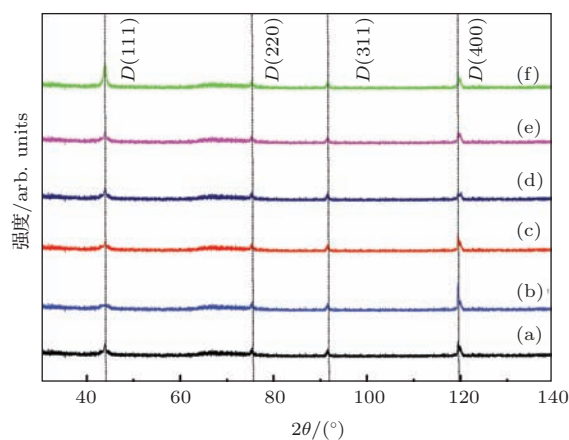


图3 不同基片温度和甲烷浓度下沉积的金刚石膜 XRD 谱 (a)—(c) CH_4 浓度为 3.0% 时, 基片温度分别为 780 °C, 880 °C 和 980 °C; (d)—(f) CH_4 浓度为 4.5% 时, 基片温度分别为 780 °C, 880 °C 和 980 °C

和(400)面的特征峰,其强度大小相似,这表明了样品f为两种取向生长的金刚石膜^[19].同理可见,其他样品均为<100>取向的金刚石膜,因为<400>面的特征峰强度比其他的金刚石特征峰的强度强很多^[20].这个结果与表面形貌的分析结果一致.

X射线衍射图谱中,(400)面与(111)面的峰强比的具体数值如图4所示.当甲烷浓度保持在3.0%左右时, $I_{(400)}/I_{(111)}$ 的数值随基片温度从780 °C至880 °C而逐渐增大.这在表面形貌上表现出的变化是晶粒尺寸的明显增加.但是当甲烷浓度保持在4.5%左右时,随着基片温度从780 °C至980 °C, $I_{(400)}/I_{(111)}$ 的数值首先增加至2.11然后降低至0.98,这与图1(d)—(f)所示的表面形貌的变化基本一致,即随着温度的升高,金刚石膜的表面形貌趋于杂乱.另外可以观察到,所有样品的X射线衍射图谱均有(111)面的衍射峰,尽管金刚石膜呈现出的是四边形的晶形结构,这一结果与Lai等^[18]所研究的结果一致.可以认为这种现象是在暗指,在所沉积的金刚石膜中存在一些杂晶结构,但是这些含碳基团可能克服了表面自由能而最终呈现出如图1(c)所示的表面形貌^[21].另外考虑到(111)面的生长速率快于(100)面的生长速率,因此从一定程度上可以认为(111)面可能更容易在晶界中形成从而易于被检测到.可以确定的是,基片温度和甲烷浓度的耦合效应会影响到金刚石膜的取向.同时可以观察到,当基片温度从780 °C上升至880 °C时,金刚石特征峰的半高宽迅速降低,而当基片温度高于880 °C时,金刚石特征峰半高宽的变化趋势逐渐减小.其原因是当基片温度较高时,即便在基片上有较为明显的温度差,但该条件下的等离子体也会将含碳气源充分分离化并有效地转换成 sp^3 结构.因此在利用基片温度和甲烷浓度来控制金刚石膜生长方面,应该存在一种规律性.

另外,经过前期实验研究发现,当甲烷浓度为3.0%,基片温度从740 °C上升至1100 °C的过程中,金刚石膜的表面形貌变化可分为五个阶段(如图5所示).在中等基片温度和较高的基片温度下可以分别沉积得到<100>取向和<111>取向的金刚石膜.当基片温度在810 °C至860 °C和930 °C至1000 °C的温度区间内时,存在两个过渡阶段,在这两个阶段中可能也能观察到(100)晶面的显现,但此时金刚石膜的表面形貌会显得较为无序.当基片温度低于800 °C时,将会沉积得到质量较低且无序生长的金刚石膜.同时可以观察到,当基片温度在

860 °C至930 °C时,很适合高取向(100)晶面金刚石膜生长.毋庸置疑的是,还需要开展更深入的研究才能使本研究所观察到的耦合规律图得以完善,但是本研所得到的耦合规律已可以证明,利用该装置已可实现金刚石膜在表面形貌、取向以及质量上的可控性生长.

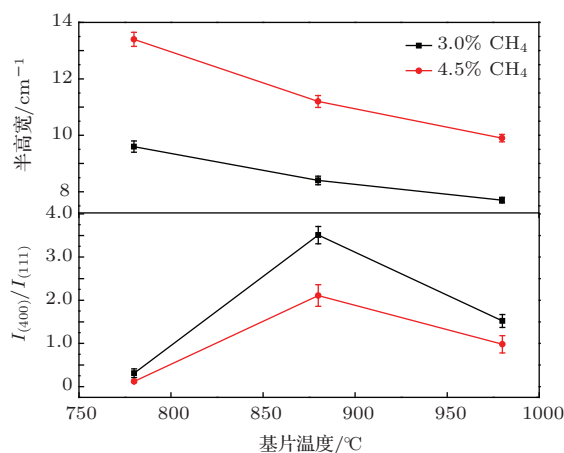


图4 不同金刚石膜样品的XRD图谱与拉曼光谱的数据分析图

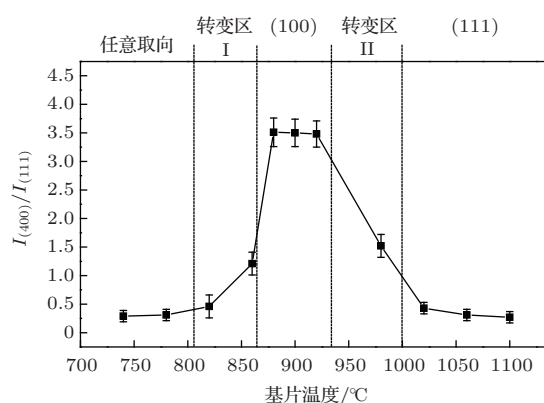


图5 甲烷浓度为3.0%时,金刚石(400)晶面与(111)晶面的X射线特征峰强度比随基片温度的变化趋势

3.4 基片温度和甲烷浓度对金刚石膜沉积速率的影响

图6具体显示了生长速率与甲烷浓度和基片温度的依存关系.图6中的每一点均与图1中所示的样品一一对应.从图中可以看出,随着甲烷浓度和基片温度的升高,均可引起生长速率的增加,在本实验条件下所能获得的最大生长速率为 $3.75 \mu\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$.从图6所示的研究结果还可以看出,虽然生长速率受到甲烷浓度和基片温度的双重影响,但生长速率受基片温度的影响更大.众所周知,基片温度主要受微波功率、沉积气压以及等离子体

中的活化基团对基片的撞击程度这三者的影响^[20]. 但是在本文中利用装置基片自加热功能可以在较低的沉积气压下, 同时提高基片温度和增加等离子体球的密度^[22]. 当基片温度较高时, 甲烷会获得足够的能量以转换成金刚石, 而非金刚石相也会在这种条件下被活化的[H]等离子体基团有效地刻蚀掉. 研究者广泛接受的是, 只要由等离子体所产生

的活化基团拥有足够高的能量从而产生较高的沉积速率, 即能使金刚石膜出现特定的晶面^[13]. 因此, 由基片自加热功能产生较高的基片温度时, 具有特定晶面的金刚石膜可以在相对较大的碳源浓度范围内获得, 这一结论与图1中所获得的研究结果一致.

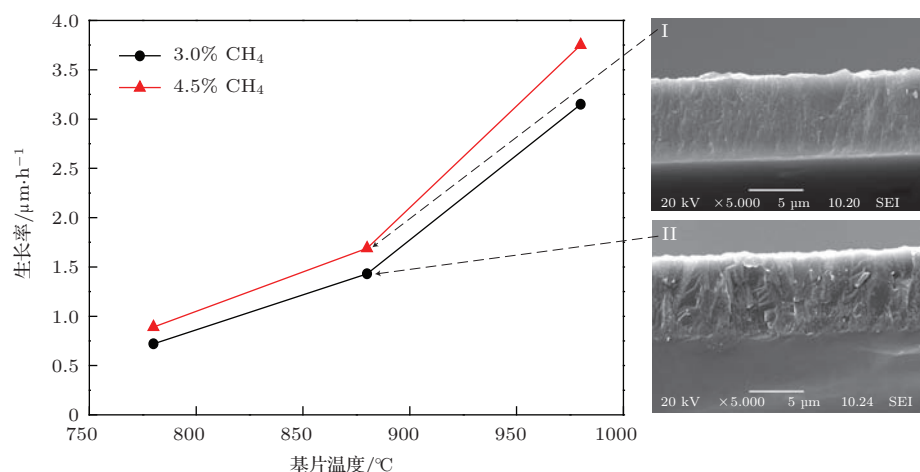


图6 金刚石膜沉积速率的变化趋势与断面结构: (I) 样品 e, (II) 样品 b

另外, 在图6中还显示了样品e与样品b的断面图, 分别标为I和II. 图I和II均显示出典型的柱状生长模式, 但是这种柱状生长的特征在图I中表现得并不明显. 其原因可能是由于样品e在较高的甲烷浓度下生长, 导致二次形核增多, 从而使沉积的晶粒尺寸较小, 因而断面比较光滑, 这与图1(e)的结果相一致.

4 结 论

采用微波等离子体化学气相沉积技术, 对高质量高取向(100)面金刚石膜的可控性生长进行了较为系统的研究, 得到了以下主要结论.

1) 在较低的沉积气压下, 利用基片自加热功能, 通过控制基片温度和甲烷浓度, 实现了高质量高取向(100)面金刚石膜的可控性生长. 为了获得表面形貌相似的(100)面金刚石膜, 在金刚石膜沉积过程中, 增加碳源浓度的同时需要同时升高基片温度.

2) 基片温度和甲烷浓度的耦合作用对金刚石膜的质量具有显著影响. 甲烷浓度一定, 金刚石膜的质量随着基片温度的上升而逐渐升高; 而基片温度一定, 金刚石膜的质量随着甲烷浓度的上升而逐

渐降低.

3) 基片温度和甲烷浓度的耦合作用同样对金刚石膜的取向具有显著影响. 主要通过甲烷浓度和基片温度的调整, 能获得高度取向<100>的金刚石膜, 且重复性好.

4) 金刚石膜的生长速率与基片温度和甲烷浓度具有依存关系, 随着甲烷浓度和基片温度的升高, 均可引起生长速率的增加, 但是要获得高质量高生长率高取向(100)面金刚石膜, 应当选择合适的基片温度和甲烷浓度.

参考文献

- [1] Wu J, Ma Z B, Shen W L, Yan L, Pan X, Wang J H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 075202 (in Chinese) [吴俊, 马志斌, 沈武林, 严磊, 潘鑫, 汪建华 2013 物理学报 **62** 075202]
- [2] Liu S, Liu J L, Li C M, Guo J C, Chen L X, Wei J J, Hei L F, Lu F X 2013 *Carbon* **65** 365
- [3] Gu C Z, Wang Q, Li J J, Xia K 2013 *Chin. Phys. B* **22** 098107
- [4] Su Q F, Xia Y B, Wang L J, Zhang M L, Lou Y Y, Gu B B, Shi W M 2005 *Chin. J. Semicond.* **26** 947 (in Chinese) [苏青峰, 夏义本, 王林军, 张明龙, 楼燕燕, 顾蓓蓓, 史伟民 2005 半导体学报 **26** 947]
- [5] Tang C J, Pereira S M S, Fernandes A J S, Neves A J, Gracio J, Bdkin I K, Soares M R, Fu L S, Gu L P,

- Kholkin A L, Carmo M C 2009 *J. Cryst. Growth* **311** 2258
- [6] Li C H, Liao Y, Chang C, Wang G Z, Fang R C 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1756 (in Chinese) [李灿华, 廖源, 常超, 王冠中, 方容川 2000 物理学报 **49** 1756]
- [7] Weng J, Wang J H, Dai S Y, Xiong L W, Man W D, Liu F 2013 *Appl. Surf. Sci.* **276** 529
- [8] Chen H, Wang J H, Weng J, Sun Q 2013 *Cemented Carbide* **30** 57 (in Chinese) [陈辉, 汪建华, 翁俊, 孙祁 2013 硬质合金 **30** 57]
- [9] Paritosh, Srolovitz D J, Battaile C C, Li X, Butler J E 1999 *Acta Mater.* **47** 2269
- [10] Wang B, Ran J G, Gou L 2004 *Sichuan Daxue Xuebao* **36** 57 (in Chinese) [王兵, 冉均国, 苟立 2004 四川大学学报 **36** 57]
- [11] Sun Q, Wang J H, Weng J, Luo M 2013 *Cemented Carbide* **30** 8 (in Chinese) [孙祁, 汪建华, 翁俊, 罗曼 2013 硬质合金 **30** 8]
- [12] Tang W, Zhu C, Yao W, Wang Q, Li F, Lu F 2003 *Thin Solid Films* **429** 63
- [13] Weng J, Xiong L W, Wang J H, Dai S Y, Man W D, Liu F 2012 *Diamond Relat. Mater.* **30** 15
- [14] Das D, Singh R N 2007 *Int. Mater. Rev.* **52** 29
- [15] Qiu D J, Shi C R, Wu H Z 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1870 (in Chinese) [邱东江, 石成儒, 吴惠桢 2002 物理学报 **51** 1870]
- [16] Zheng Q K, Wang L J, Shi L Y 2013 *Surf. Coat. Tech.* **228** S379
- [17] Zhang L, Ma G J, Lin G Q, Ma H, Han K C 2014 *Chin. Phys. B* **23** 048102
- [18] Lai W C, Wu Y S, Chang H C, Lee Y H 2010 *Diamond Relat. Mater.* **257** 1729
- [19] Kim Y K, Lee K Y, Lee J Y 1996 *Thin Solid Films* **272** 64
- [20] Tang C J, Grácio J, Fernandes A J S, Calisto H, Neves A J, Carmo M C 2009 *Vacuum* **83** 340
- [21] Janischowsky K, Stammer M, Ley L 1999 *Diamond Relat. Mater.* **8** 179
- [22] Zuo S S, Yaran M K, Grotjohn T A, Reinhard D K, Asmussen J 2008 *Diamond Relat. Mater.* **17** 300

Preparation of the high-quality highly (100) oriented diamond films with controllable growth*

Liu Cong¹⁾ Wang Jian-Hua^{1)2)†} Weng Jun¹⁾²⁾

1) (*Key Laboratory of Plasma Chemical and Advanced Materials of Hubei Province, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430073, China*)

2) (*Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

(Received 16 July 2014; revised manuscript received 10 September 2014)

Abstract

The high-quality highly (100) oriented diamond films each with controllable surface morphology, quality, orientation, and growth rate are prepared at low pressure by microwave plasma chemical vapor deposition. The results show that there is a coupled effect between substrate temperature and methane concentration on the growth of (100) oriented diamond films. The substrate temperature should be increased with increasing the methane concentration in order to obtain similar surface morphologies. When the methane concentration is 3.0%, the results indicate that there are five states for the orientation change with the substrate temperature increasing from 740 °C to 1100 °C, and the diamond films with (100) orientation can be deposited at the substrate temperatures ranging from 860 °C to 930 °C. Moreover, the quality and growth rate of each of (100) oriented diamond films are proportional to the substrate temperature and methane concentration, respectively. In order to obtain the high-quality highly (100) oriented diamond films, the substrate temperature and methane concentration should be both appropriate.

Keywords: diamond film, chemical vapor deposition, orientation, quality

PACS: 81.05.ug, 81.15.Gh, 81.10.Aj

DOI: 10.7498/aps.64.028101

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11175137), and the the Research Fund of Wuhan Institute of Technology, China (Grant No. 11111051).

† Corresponding author. E-mail: wjhwz@126.com