マイクロ波液中プラズマ CVD を用いたボロンドープダイヤモンドの超高速成長

(東理大院理工 ¹・東理大総研 ²・旭ダイヤモンド工業株式会社 ³・埼工大工 ⁴) 〇富永悠介 ^{1,2}・上塚洋 ^{2,3}・石田直哉 ²・近藤剛史 ^{1,2}・湯浅真 ^{1,2}・佐藤進 ⁴・藤嶋昭 ²・寺島千晶 ^{1,2}

Extremely Rapid Growth of Boron-Doped Diamond by Using In-liquid Microwave Plasma CVD (¹Graduate School of Science and Technology, Tokyo University of Science, ²Research Institute for Science and Technology, Tokyo University of Science, ³Asahi Diamond Industrial Co., Ltd., ⁴Faculty of Engineering, Saitama Institute of Technology) ○Yusuke Tominaga,¹¹² Hiroshi Uetsuka,²³³ Naoya Ishida,² Takeshi Kondo,¹¹² Makoto Yuasa,¹¹² Susumu Sato,⁴ Akira Fujishima,² Chiaki Terashima,¹¹²

Boron-doped diamond (BDD) has excellent electrochemical properties, thus it is expected to be applied as a novel electrode material for CO_2 reduction. Although effective diamond growth method is required for this purpose, conventional gas-phase CVD provides a very low growth rate ($<5 \,\mu m/h$). Therefore, we have been focusing on the in-liquid microwave plasma CVD which can generate high density plasma in the solvent. Recently, we succeeded a rapid growth ($284 \,\mu m/h$) of BDD with IL-MPCVD¹⁾. However, the optimal experimental conditions of BDD growth have not been studied about especially pressure and microwave (MW) power. This research investigated further rapid growth of BDD by optimizing their experimental conditions. Fig. 1 shows a surface morphology of BDD synthesized by each condition ((a)-(d)). In (b)-(d), (111) and (100) surfaces peculiar to diamond were confirmed. Furthermore, extremely high growth rate of 410 $\,\mu m/h$ was achieved under the high pressure and high MW power condition. It was found that BDD can grow 100 times faster than gas-phase CVD by using the present method.

Keywords: Boron-doped diamond; Diamond electrode; In-liquid microwave plasma CVD

ボロンドープダイヤモンド(BDD)は優れた電気化学特性を有し、CO2 還元用の電極として応用が期待されている。BDD を実用する場合、ダイヤモンドを効率的に合成する技術が必要となるが、従来の気相 CVD では遅い成長速度 (<5 μm/h) が問題となる。この問題を解決すべく、我々は溶媒中で高密度なプラズマを発生できるマイクロ波液中プラズマ CVD (IL-MPCVD)に着目している。当研究室では IL-MPCVD を用いた BDD の高速成長(284 μm/h)を実証したが 1、BDD の成長における反応器内圧力やマイクロ波出力等の影響は検討されていない。そこで、本研究はこれらの成膜条件を最適化することで BDD のさらなる高

速成長を検討した。様々な条件で合成したBDDの表面形態と成長速度を図1に示す。(b)-(d)の条件でダイヤモンドの(111)から(100)面が明瞭に観察された。条件(d)の高圧力・高出力の条件では、410 μm/h の成長速度を示し、従来の気相 CVD の約 100 倍の成長速度が可能であることを見出した。

	(a)	(b)	(c)	(d)
圧力	20 kPa	40 kPa	60 kPa	80 kPa
マイクロ波出力	500 W	500 W	550 W	600 W
距離	1.0 mm	1.0 mm	1.0 mm	1.0 mm
表面形態	<u>5 //m</u>	10 µm	10 am	10 µm
配向性	-	<111>	<111><100>	<100>
成長速度	79 µm/h	212 µm/h	364 µm/h	410 µm/h

Fig. 1 IL-MPCVD で合成した BDD の 表面形態と成長速度

1) C. Terashima et al., Diam. Relat. Mater. 2019, 92, 41.