



Title	Transmission Electron Microscopic Study of CVD-Diamond Grown on Platinum Substrate
Author(s)	周, 国富
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/41409
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	しゅう くに ふう 周 国 富
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 4 6 1 2 号
学 位 授 与 年 月 日	平成11年3月25日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用物理学専攻
学 位 論 文 名	Transmission Electron Microscopic Study of CVD-Diamond Grown on Platinum Substrate (透過電子顕微鏡によるプラチナ基板上に成長した気相合成ダイヤモンドの研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 志水 隆一 (副査) 教 授 中島 信一 教 授 八木 厚志 教 授 後藤 誠一 教 授 豊田 順一 教 授 高井 義造

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、大面積で高品質のダイヤモンド単結晶薄膜を作製することを最終目的として、気相合成法により白金(111)単結晶基板上に成長したヘテロエピタキシャルダイヤモンドの界面構造を断面透過電子顕微鏡法により解析を行っている。とくに、孤立ダイヤモンド微粒子の断面観察よりプラチナ表面上におけるダイヤモンドエピタキシャル成長機構の解明を試み、ダイヤモンドがプラチナ表面より直接核成長していることを見出している。

第1章では、ダイヤモンドの構造とその特異な性質並びにダイヤモンド合成法の歴史的背景を概観している。さらに最近注目されているプラチナ(111)基板上における気相合成法によるヘテロエピタキシャルダイヤモンド成長についての最新情報を紹介し、電子顕微鏡を用いた成長界面の構造解析の重要性を指摘して本研究の目的と意義について述べている。

第2章では、本研究において界面研究のツールとして用いた透過電子顕微鏡と集束イオンビーム装置について説明しその原理を紹介し、基礎となる電子と固体との相互作用、電子回折理論、結像理論について説明している。また、集束イオンビームによってシリコン加工表面に形成される非晶質加工損傷層の厚みの加速電圧依存性を明らかにし、加工される試料が金属である場合は微結晶層が形成される場合があることを指摘している。

第3章では、プラチナ(111)単結晶基板上にヘテロエピタキシャル成長した気相合成ダイヤモンド薄膜の結晶性を電子顕微鏡により評価した結果について述べている。断面観察から各結晶は柱状組織を持っており、成長とともに(111)方位を有する結晶が他の結晶粒を覆い隠すように優先的に成長して単結晶に近づいていくことを明らかにしている。また、界面は凹凸の激しい形状をしており、凹部には多量のグラファイトが形成されていること、多くの微小プラチナ粒が界面付近に散在していること、ヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンド結晶粒は中間生成物なしにプラチナと直接接合していること等を明らかにしている。

第4章では、集束イオンビームを用いてプラチナ上に成長した孤立ダイヤモンド粒を加工し、電子顕微鏡を用いてその界面構造を観察した結果を示している。界面構造は第3章で述べた場合と同様に非常に激しい凹凸形状を示しているが、核発生点と思われる孤立粒の中央部の界面にはプラチナの突起物が観察され、この突起物からダイヤモンドが中間生成物なしに成長していることを明らかにしている。

第5章では、負バイアス処理をしたプラチナ上に成長した孤立ダイヤモンドの界面構造を観察し、界面に激しい凹凸形状が形成されていることを示している。またヘテロエピタキシャルダイヤモンド粒は基板と直接方位整合してい

るのに対して、ヘテロエピタキシャル成長していない界面では基板との間に直接的な接合がみられないことを明らかにしている。これらの観察からダイヤモンドのヘテロエピタキシャル成長には結晶性のよい白金が凹凸形状をしていることが必須の条件であり、ダイヤモンド成長はプラズマに常にさらされることによりグラファイトが形成されなかった凸形状の領域から発生すると結論している。

第6章では、本研究の総括を行い、今後の展望として大面積の単結晶薄膜を作製するための指針と具体的方策について述べている。

論文審査の結果の要旨

本研究は、プラチナ単結晶基板上にヘテロエピタキシャル成長した気相合成ダイヤモンドがどのような機構で成長するかを解明するために、透過電子顕微鏡を用いて白金基板とダイヤモンドの界面構造を原子レベルで解析した結果をまとめたものである。とくに、核成長点が特定できる孤立ダイヤモンド微粒子の断面観察を試み、ダイヤモンドがプラチナ表面より直接核成長していることを見出し、ダイヤモンドのヘテロエピタキシャル成長機構のモデルを提案している。また大面積で高品質のダイヤモンド単結晶薄膜を作成するために必要な基板処理法を提案している。本研究成果を要約すると以下の通りである。

- (1) プラチナ (111) 単結晶基板上にヘテロエピタキシャル成長した気相合成ダイヤモンド薄膜の結晶性を電子顕微鏡により評価し、各結晶は柱状組織を持っており、成長とともに (111) 方位を有する結晶が他の結晶粒を覆い隠すように優先的に成長して単結晶に近づいていくことを明らかにしている。また界面は凹凸の激しい形状をしており、凹部には多量のグラファイトが形成されていること、多くの微小プラチナ粒が界面付近に散在していること、ヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンド結晶粒は中間生成物なしにプラチナ凸部と直接方位接合していること等を原子レベルで明らかにしている。
- (2) 集束イオンビームを用いてプラチナ上に成長した孤立ダイヤモンド粒を薄片化し、その界面構造を電子顕微鏡を用いて観察し、界面がダイヤモンド薄膜の場合と同様に非常に激しい凹凸形状をしていること、核発生点と思われる孤立粒の中央部の界面にはプラチナの突起物が観察されること、この突起物からダイヤモンドが中間生成物なしに成長していること等を見出している。
- (3) 負バイアス処理によりプラチナ上に成長した孤立ダイヤモンドの界面構造を観察し、この場合も界面に激しい凹凸形状が形成されていること、またヘテロエピタキシャルダイヤモンド粒は基板と直接方位整合しているのに対して、ヘテロエピタキシャル成長していない界面では基板との間に直接的な接合がみられないことを明らかにしている。以上の結果から、ダイヤモンドのヘテロエピタキシャル成長には結晶性のよい白金が凹凸形状をしていることが必須の条件であり、ダイヤモンド成長はプラズマに常にさらされることによりグラファイトが形成されなかった凸形状の領域から発生すると結論している。

以上のように、本論文では断面透過電子顕微鏡法によりダイヤモンドとプラチナ基板の界面構造に関する新しい知見を得て、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドの成長機構を提案している。特に、集束イオンビーム法を用いた超微細加工法を併用することにより核発生点が特定できるダイヤモンド初期成長粒の界面構造を解析し、ダイヤモンドがプラチナ基板上に直接方位整合して成長していることを明らかにしている。この成果は応用物理学、特に表面・界面物性学の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。