Osaka University Knowledge Archive

Title	高品質単結晶ダイヤモンドのデバイス対応低欠陥密度化に関する研究
Author(s)	辰巳, 夏生
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/69586
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（辰　巳　　夏　生　　）	
論文題名	高品質単結晶ダイヤモンドのデバイス対応低欠陥密度化に関する研究

論文内容の要旨

本論文は高品質単結晶ダイヤモンドのデバイス対応低欠陥密度化に関する研究についてまとめたものであり、5章より構成されている。以下に各章の内容を要約する。

第1章「序論」では、ダイヤモンドの歴史、物性、デバイス応用への可能性について述べ、本研究が占める位置付けと目的を明らかにし、本論文の構成を示した。次世代の光学部品やパワーデバイスを初めとした様々なデバイスを実現するための材料として高品質なダイヤモンド単結晶が求められているが、未だ完全に無欠陥の結晶が常に得られるわけではない。また、実際のデバイスなどに応用するには、ダイヤモンド表面の研磨技術が不可欠であるが、ダイヤモンドはその硬さゆえに研磨は非常に困難であった。本論文は単結晶ダイヤモンド内部の結晶欠陥の分析、その低減技術、研磨時に生じる表面層の欠陥を低減する技術とそのメカニズムを追求したものである。

第2章「高圧合成プロセス時に生じるダイヤモンドの結晶欠陥の低減」では、ダイヤモンド内部にある点欠陥、転位などの線欠陥、積層欠陥などの面欠陥の分布と挙動について研究した。高圧法によるIIa型ダイヤモンドは(001)成長セクターでは非常に欠陥が少ない物が得られているが、(111)成長セクターでは転位と積層欠陥が多数残留していた。転位や積層欠陥を低減するための合成後処理は、炭素の強固な共有結合のため超高圧でなければダイヤモンドがグラファイトに相転移してしまうと考えられていたが、本研究により転位や積層欠陥の処理はより低温のアニールで充分であり、試料の損傷が少ない常圧下の処理で欠陥面密度を低減させることができることを見出した。また、この挙動から単結晶ダイヤモンド中の積層欠陥はShockley型であり、(111)成長セクターで生成される完全転位が結晶のすべり方向と一致するため、合成後の減圧工程など応力のかかるプロセスで積層欠陥になってしまうのに対し、(001)成長セクターの完全転位はすべり面に沿っていないため、高圧法で合成した単結晶ダイヤモンドは(111)成長セクターでのみ高い欠陥密度となる新たな成長モデルを提案した。

第3章「ダイヤモンドの研磨プロセス時に生じる表面・表面近傍の欠陥の低減」では、従来の硬いダイヤモンド砥粒を用いた機械的研磨では表面層ダメージが導入されたのに対し、遥かに柔らかいSiO_2盤でもトライボプラズマを利用して電気的及び光学的に励起することで、化学的研磨が促進されることを見出した。このため、機械的研磨で大きかった研磨速度の異方性が小さくなり、全く異なる反応で摩耗が進行することが分かった。また表面層ダメージは評価が困難だったが、ダイヤモンドが負の電子親和力を示すことを利用し、2次電子像でダイヤモンド中のキャリアの消滅状態の分布測定ができることを見出した。その結果、従来の機械的研磨ではキャリアが消滅する結晶欠陥が生成されるのに対し、新しい化学的研磨では表面層ダメージが少なく、理想に近い表面が得られることを明らかにした。

第4章「新規化学的研磨を施した低欠陥密度IIa型ダイヤモンド上のホモエピタキシャルＣＶＤ積層膜の欠陥評価」では、前章までの高品質かつ表面欠陥の少ないIIa型単結晶ダイヤモンドの欠陥評価を行った。この種基板は広い(001)成長セクターを持ち、点欠陥・転位・積層欠陥がほとんどない高品質な結晶であるが、外周部の(111)成長セクターではやや多い点欠陥と、転位や積層欠陥が残留していた。この試料を(001)面から5度傾斜させた微斜面基板に加工し、前章の低ダメージ化学的研磨を行い、その上に高パワーのCVD法でダイヤモンドをホモエピタキシャル成長させることで、自由励起子発光強度が極めて強く、更に基板の点欠陥分布を打ち消して広い面積で均一性の高い高品質CVD単結晶ダイヤモンド層が得られることが分かった。一方、種基板の外周部分の(111)成長セクターでは積層欠陥が残留しており、その上のCVD層は表面の異常形状と発光欠陥が生成されることが分かり、積層欠陥の場所とよく一致することが分かった。今後、第2章で示された欠陥低減法を用いることにより、より大面積での高品質単結晶ダイヤモンドが得られる可能性があることが分かった。

第5章「結論」では、本研究の全体的な総括を行った。本研究によって、将来の光学的、電気的なダイヤモンドのデバイス応用と、従来より更に優れた機械的特性を持つ工具の利用などが加速されると期待される。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　辰巳　夏生　）			
論文審査担当者		(職)	氏　名
	主 査	教授	伊藤　利道
	副 査	教授	森　勇介
	副 査	教授	吉村　政志
	副 査	教授	片山　光浩
	副 査	教授	尾﨑　雅則
	副 査	教授	片山　竜二
	副 査	教授	近藤　正彦
	副 査	教授	森　伸也
	副 査	教授	八木　哲也

論文審査の結果の要旨

本論文は、種々の優れた物性値を有する単結晶ダイヤモンドのデバイス応用可能なレベルへの高品質化を目指し、バルク単結晶ダイヤモンドの低欠陥密度化、表面研磨過程で生じる損傷の低減、及び、大面積化につながるホモエピタキシャル成長膜の品質評価に関する研究についてまとめたものであり、以下の 5 章より構成されている。

第 1 章では、ダイヤモンド研究の歴史、物性、デバイス応用への可能性について述べ、次世代の光学部品やパワーデバイスを初めとした様々なデバイスを実現するための材料として期待されている高品質ダイヤモンド単結晶に関して本研究が占める位置付けと目的を明らかにしている。

第 2 章では、超高圧・高温合成(以下、高圧合成と記す)IIa 型単結晶ダイヤモンド内部にある点欠陥、転位などの線欠陥、積層欠陥などの面欠陥についてバルク単結晶中の存在形態を評価するとともに、その低減方法を提案・実証している。特に、従来は超高圧・高温下での処理でなければ、転位や積層欠陥は低減できないと考えられていたが、試料の損傷が少ない常圧下において、従来処理温度より低温の 1500℃でアニール処理すれば、転位や積層欠陥面密度を低減できることを見出していることは特筆に値する。また、当該アニール処理による積層欠陥の挙動の詳細な解析により、当該欠陥が Shockley 型であること、並びに、転位の方向とダイヤモンド結晶のすべり方向との相関があることを明らかにし、高圧合成 IIa 型ダイヤモンド単結晶は(111)成長セクターでのみ高い欠陥密度となることを説明できる成長モデルを提案している。

第 3 章では、実用的には不可欠なダイヤモンドの研磨について、これまでの標準的研磨方法である非常に硬いダイヤモンド砥粒を用いる機械的研磨方法では、研磨の際に発生してしまう単結晶表面層の損傷について、有効に低減できる研磨方法を見出したことを述べている。即ち、ダイヤモンド砥粒に比べ格段に柔らかい SiO_2 盤とダイヤモンド表面との間に発生するトライボプラズマによる、”電気的及び光学的な励起に基づく化学反応が活用できる”ため、ダイヤモンド表面の研磨が促進される上、研磨速度の異方性が小さくなり、ダイヤモンド表面層に形成される機械的損傷も従来法に比べ大幅に低下することを見出している。また、負の電子親和力を有する水素終端ダイヤモンド表面の標準的な走査型電子顕微鏡像(2 次電子像)から得られるダイヤモンド中の励起キャリアの消滅状態の面分布情報、顕微ラマン信号強度・シフトの表面・断面分布情報、並びに、原子間力顕微鏡像による表面形状の評価等に基づき、当該化学的研磨法を適用することにより、表面ダメージが少なく、より理想に近いダイヤモンド表面層が形成できることを実証している。

第 4 章では、ダイヤモンドのデバイス応用には不可欠な”高品質で表面欠陥の少ない微斜面(001)高圧合成単結晶ダイヤモンド基板上のホモエピタキシャル CVD 成長”に関する研究成果を述べている。具体的には、CVD 成長前後の欠陥評価から、基板周辺に存在する(111)成長セクター領域を除く中央部の広い(001)成長セクター領域では、点欠陥・転位

や積層欠陥がほとんどない高品質高圧合成ダイヤモンド結晶が得られること、並びに、多少の局所的な欠陥があってもその上に適切な条件下で CVD 成長して得られるホモエピタキシャル膜は、励起子発光強度が室温でも極めて強く、それ以外の欠陥由来の発光がバックグラウンドレベルとなるような高品質ダイヤモンド層が得られることを実証している。この研究成果は、上記のバルク結晶中の欠陥低減法(第 2 章)、表面損傷を低減できる表面研磨法と微斜面(001)上の CVD 成長法を適切に組み合わせれば、より大面積でデバイス応用可能なレベルの高品質単結晶ダイヤモンドの作製や今後のダイヤモンドデバイスへの広い活用への展開が期待できることも述べている。

第 5 章では、第 2 章から第 4 章で得られた研究成果を総括し本博士論文の結論を記し、当該研究分野における研究進展への本研究成果の寄与について言及している。

以上のように、本論文は、常圧下での 1500℃アニールによるバルク高圧合成 IIa 結晶中の欠陥低減方法、SiO_2 基盤を用いた研磨プロセスによる表面研磨損傷層の低減方法、並びに、微斜面(001)基板上へのホモエピタキシャル CVD 膜の適正な形成プロセスを提案し、ダイヤモンドにおいてデバイス応用可能なレベルの高品質性が担保できることを実証している。これらの研究成果は、物性論的に様々な優れた特性を有する電気電子材料である単結晶ダイヤモンドにおいて実用化デバイス化技術の根幹をなす主要３技術の進展に少なからず寄与しており、電気電子材料工学分野の発展に貢献しているところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。