

(様式第4号)

実施課題名※ Si, Ge ドープ超ナノ微結晶ダイヤモンド膜の粉末 X 線回折による構造評価

English The powder XRD evaluation of Si- or Ge-doped ultrananocrystalline diamond films

著者氏名 吉武 剛

English Tsuyoshi Yoshitake

著者所属 九州大学大学院総合理工学研究院融合創造理工学部門

English Department of Applied Science for Electronics and Materials, Kyushu University

※長期利用課題は、実施課題名の末尾に期を表す (I)、(II)、(III) を追記すること。

1. 概要

Si ドープ超ナノ微結晶ダイヤモンド(UNCD)/水素化アモルファスカーボン混相膜の粉末 XRD による構造評価を行った。アンドープ膜同様に diamond-111, -220 からの回折線が得られ、膜中に UNCD 結晶が存在していることが明らかとなった。シェラーの式から見積もった見かけの粒径は約 5 nm と、アンドープ膜と比べて同程度となることが分かった。またヘビードープのサンプルに関しては、シリコンカーバイドが膜中に成長していることがわかった。

(English)

Si-doped ultrananocrystalline diamond/hydrogenated amorphous carbon composite films were structurally evaluated by powder XRD measurement. The diffraction peaks attributable for diamond-111, and -220 were observed. The grain size estimated using Shieley's formula was approximately 5 nm. This value is comparable to that of undoped films. As for the heavily Si-doped films, the existence of silicon carbide was confirmed.

2. 背景と研究目的：

超ナノ微結晶ダイヤモンド・水素化アモルファスカーボン混相(UNCD)膜は、無数の粒径 10 nm 以下のダイヤモンド微結晶がアモルファスカーボンマトリックスに内在する構造を持ち、(i)極めて滑らかな膜表面、(ii)DLC に比べ高温安定性、(iii)紫外領域において大きな光吸収係数を有するなど物理的・電氣的に興味深い材料である。これまで我々は UNCD 膜の B ドープによる p 型化、N ドープによる n 型化を実現し、シンクロトロン光を用いた NEXAFS, XPS, XRD 測定を基調とした解析で、膜中の化学結合状態や構造評価を行ってきた。ナノレベルで複雑な構造形式を有する UNCD 膜に対してはシンクロトロン光が格段に有効であり、伝導型発現の起源や不純物元素の結合状態など重要な物理特性が明らかにされつつある段階にきている。今回の測定では、Si および Ge ドープされた UNCD 膜の構造評価を行うことを目的とする。それぞれ内部応力緩和や光学バンドギャップ制御の効果が確認されており、それら物性の起源を明らかにしていく。実験では系統的にドープ量を変化させたサンプルに関して構造評価を行った。

3. 実験内容 (試料、実験方法の説明)

利用ビームライン：BL15

粉末 X 線回折 2θ 法

Diamond-111,-222,311 ピーク

スキャン範囲：10°～70°

UNCD 膜に関しては、これまでのアンドープ膜、B or N ドープ膜での測定同様に粉末 XRD の測定を行った。Si or Ge がドーパントとしてどのような結合様式を持つのか、ドーピングによって diamond 構造がどのように変化するのかを調べた。

4. 実験結果と考察

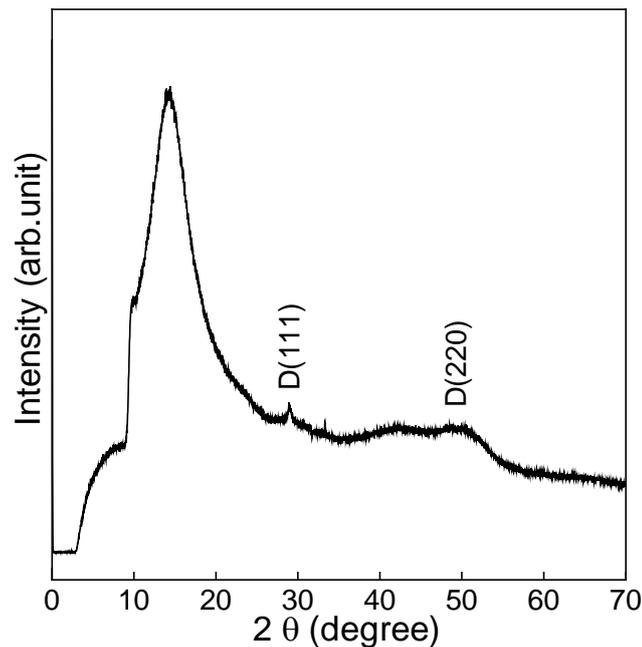


図 1. アンドープ超ナノ微結晶ダイヤモンド膜の粉末 XRD 測定結果

図 1 に PLD 法で作製した超ナノ微結晶ダイヤモンド膜の粉末 XRD 測定結果を示す。15 度付近に見られるブロードなピークは、キャピラリーによる散乱光である。UNCD 膜の XRD 結果では、diamond-111, -220 に起因する回折線が観測された。シェラーの式から見積もった見かけの粒径は約 5 nm と、以前 TEM 像で観測した結果と一致している。次に Si ドープ UNCD 膜の粉末 XRD 結果を図 2 に示す。今回用いたグラファイトターゲットは、Si 10 at.% がドーピングされたものである。粉末 XRD の測定結果からは、微小なダイヤモンド結晶粒からの回折と思われる diamond-111, -220 からのピークに加え、SiC, graphite に起因する強い回折線が見られた。膜中にドーピングされた Si 量が大きすぎたために、カーバイドの相が生成されたことが考えられる。また、graphite からの回折線は、粉末を作成する際にターゲットから僅かに混入したものと思われる。diamond-111 の回折線を用いてシェラーの式で見積もった見かけの粒径は 5 nm 程度であり、これはアンドープ時とほとんど同程度の値である。Si 原子は diamond 結晶成長に大きな変化を与えていない事が分かった。今後は、系統的にドーピング量を変化させ、diamond 結晶の詳細な構造評価を行っていきたい。

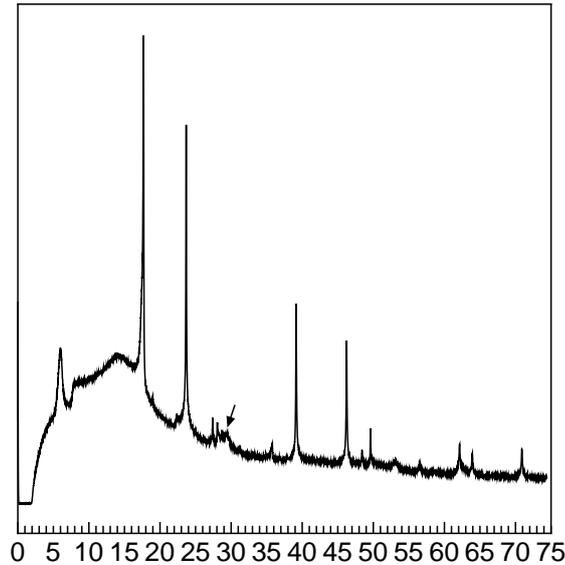


図 2. Si 20at.% ドープグラファイトターゲットを用いて作製した超ナノ微結晶ダイヤモンド膜の粉末 XRD 測定結果

5. 今後の課題：

今回は Si ドープ超ナノ微結晶ダイヤモンド膜の粉末 XRD 測定を行った。ヘビードーピングした試料においては、diamond の膜中に存在していることに加えカーバイド相が成長していることが明らかとなった。今後はより詳細にドーピング量を系統的に変化させたサンプルに対して評価を行い、diamond 結晶構造の詳細な見積もりを行っていきたい。

6. 論文発表状況・特許状況

(学会発表)※予定を含む

Variable Optical Band Gap controls of Ultrananocrystalline Diamond/Hydrogenated Amorphous Carbon Composite Films by Silicon-Doping

Hikaru Ichinose, Shinya Ohmagari, Aki Tominaga, and Tsuyoshi Yoshitake

22nd European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, and Nitrides (Diamond 2011), September 4-8, 2011 Garmisch-Partenkirchen, Bavaria, Germany

(planned)

7. 参考文献

1 *Ultrananocrystalline diamond*, edited by Olga A. Shenderova and Dieter M. Gruen (William Andrew Publishing, New York, 2006).

2 T. YOSHITAKE, A. NAGANO, M. ITAKURA, N. KUWANO, T. HARA, and K. NAGAYAMA, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2*, **46**, L936 - L938, 2007.

8. キーワード (試料及び実験方法を特定する用語を 2～3)

・超ナノ微結晶ダイヤモンド

粒径 10nm のダイヤモンド結晶粒がアモルファスカarbon中に内在する構造をとる。プラズマ中もしくは基板表面中で活発に起こる核生成プロセスで膜が形成され、膜面内、面直方向に多数の結晶粒が分布している。また結晶粒界が多く存在することで、物性が結晶よりむしろ粒界支配的となることが知られている。