

## 第7章 結論

本研究では、電子、光デバイス用材料への適用を目指し、ダイヤモンド薄膜の高品質化と電気的、光学的特性を左右する薄膜内の欠陥や不純物の電子状態の基礎物性を明らかにすることを目的とし、マイクロ波プラズマ CVD 法によるダイヤモンド薄膜の合成とその物性評価、特に光学的特性評価に関する研究を行った。

本研究で、従来の合成ダイヤモンド薄膜と比較し、高品質の単結晶ダイヤモンド薄膜の合成法を見出し、電子デバイス及び光デバイス化に必要な基板全体にわたる原子レベルでの平坦化に成功した。このダイヤモンド薄膜は、従来の合成ダイヤモンド薄膜では実現できなかった、室温下でのエキシトン発光を実現させ、天然ダイヤモンドの物性を越える優れた材料になっていることを示した。さらに、本研究での合成法で得られた薄膜を用いて、エキシトン発光強度が励起電子ビーム電流に対し非線形増加を示すことを初めて見出し、エキシトンを利用した発光デバイスの実現への可能性を示唆する結果を得た。

以上、本研究では、ダイヤモンド本来の物性を発現させ、高機能な電子、光デバイス材料開発に必要な基礎的成果を得ることができた。

以下に各章で得られた成果を要約する。

第4章では、ダイヤモンド合成条件のうち、特に、 $\text{CH}_4$  と  $\text{H}_2$  の混合比を大きく変化させた。その結果、極端に低い  $\text{CH}_4$  濃度は、異常成長粒子や成長丘などのホモエピタキシャルダイヤモンド薄膜特有の不完全性の発生が抑制され、原子レベルで平坦な膜が形成されることを見出し、極低  $\text{CH}_4$  濃度合成法として高品質な薄膜合成方法の新たな提案をした。この時、原子レベルの平坦化を達成させるには、水素によるエッティングとエピタキシャルのバランスに加えて、低い基板オフ角が重要なパラメータであることを明らかにした。

また、異常成長粒子には、従来観測されている粒子とは形成機構の異なる、ナノクリスタルの存在を発見した。ナノクリスタルは、むしろダイヤモンドの品質を直接左右することを示唆し、特に本研究で見出した極低  $\text{CH}_4$  濃度合成法は、2つのタイプの異常成長粒子を抑制する効果があることを示した。

第5章では、ステップフローモードにより成長したダイヤモンド薄膜と従来多くの報告がある異常成長粒子、成長丘の見られる核成長モードを中心とした異常成長膜の CL スペクトルの比較を行い、成長モードの違いが与える光学的特性の相違を明確にした。そして、ステップフロー成長薄膜から CVD 法によるダイヤモンド薄膜では初めて室温における強

いエキシトン発光を観察した。これにより、ステップフロー モードによる成長が拡張欠陥の形成を抑えるのに有効であることを示した。また、ステップフロー成長したダイヤモンド薄膜で支配的に観測された窒素、空孔関連の点欠陥から形成される発光センタは、極低CH<sub>4</sub>濃度合成法により抑制することが可能であることを明らかにし、そして、得られた薄膜は、高純度で高品質な結晶になっていることを示した。

最後に、第6章では、エキシトン発光強度の非線形増加を初めて観察した。そして、極低CH<sub>4</sub>濃度合成法により合成したダイヤモンド薄膜がエキシトン発光プロセスに対し十分に最適化された高品質結晶になっていることを示した。これにより、エキシトンを利用した発光デバイスの実現への可能性を示唆する結果を得た。