

[补充信息]

用于 MPCVD 金刚石薄膜生长的高表面质量 HTHP 金刚石的制备

段 鹏¹, 彭 燕^{1,✉}, 王希玮¹, 韩晓桐¹, 王笃福², 胡小波¹, 徐现刚¹

- 1 山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250000;
- 2 济南科技有限公司, 济南 250000

[Supplementary Information]

Preparing HTHP Diamond with High Surface Quality for MPCVD Diamond Film Growing

DUAN Peng¹, PENG Yang¹, WANGXiwei¹, HAN Xiaotong¹, WANG Dufu²,
 HU Xiaobo¹, XU Xiangang¹

- 1 State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250000,China;
- 2 Jinan Diamond Technology Co., Ltd., Jinan 250000,China

MPCVD 单晶金刚石生长方法

20 世纪 80 年代日本无机材料研究所发现了微波等离子体化学气相沉积法生长金刚石单晶薄膜。本实验中在 CH₄ 和 H₂ 的气氛状态下进行,微波源产生的微波通过波导管传输到谐振腔体中,以基片台为中心形成强力的电磁场,微波源提供的能量使 H₂ 和 CH₄ 电离,形成等离子体见图 S1。

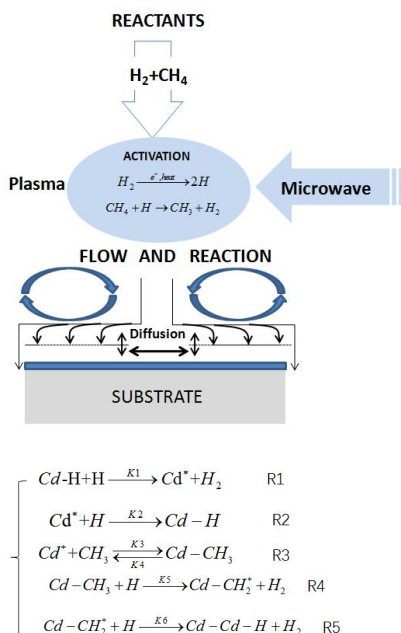


图 S1 MPCVD 金刚石生长示意图

Fig. S1 Schematic diagram of MPCVD diamond growth

根据 Harris 和 Goodwin 提出的模型可以简单的描述金刚石薄膜的生长原理，模型中只涉及两种气体（H 和 CH₃）和五个反应。首先是通过吸附的氢原子与来自气相（R 1）的氢。原子的反应生成活性位点 Cd*。产生的活性位点然后可以被来自气相（R 2）的原子重新占据。反应 R 1 和 R 2 定义了活性位点的比率 $k_1 / (k_1 + k_2)$ ，其仅取决于表面温度。活性位点还可以接受通过连续的反应（R 3, R 4 和 R 5）加入金刚石晶格的甲基自由基。从这一简化的动力学方案中，可以得出{100}金刚石平面 G {100}的生长速率，这取决于反应 1 至 5 的速率常数以及表面的 H 和 CH₃ 浓度。

单晶金刚石薄膜生长模式

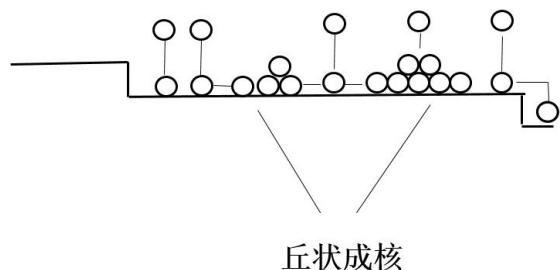


图 S2 丘状形核生长示意图

Fig.S2 Schematic diagram of the growth of the nucleus

图 S2 为丘状形核生长示意图，其中实线表示扩散方向。由于生长台阶较宽，而在台阶表面发生二次形核的基团扩散距离较短，从而造成金刚石薄膜丘状形核生长。二次形核速率比生长速率快，因此丘状体一旦形成则会快速生长，并且其顶部的多晶晶粒的生长速率也高于单晶外延的生长速率，所以随着生长时间的延长，丘状体及其顶部的多晶会覆盖金刚石单晶薄膜表面，从而阻断了单晶外延的生长，单晶表面被多晶覆盖，如图 S3 所示。在高甲烷浓度和高衬底温度下，这一现象更为明显。

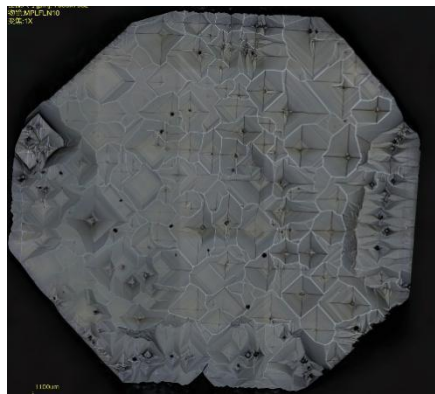


图 S3 金刚石薄膜表面形貌

Fig. S3 Surface morphology of diamond film

层状生长是有利于单晶金刚石保持持续外延的生长模式。与丘状生长模式不同，层状生长中台阶宽度比基团扩散距离要短，同时由于台阶边缘势能较低，碳氢基团可扩散至台阶边缘，保持层状生长模式，其示意图如图 S4a 所示，图 S4b 为外延制备单晶金刚石的台阶流生长模式的激光共聚焦显微镜照片。

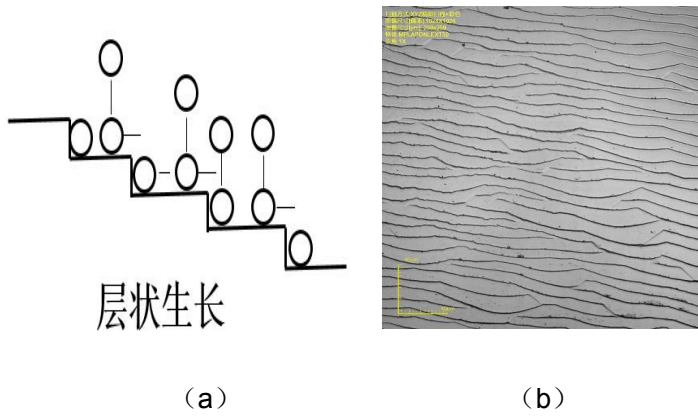


图 S4 金刚石薄膜层状生长

Fig.S4 Diamond film layered growth:(a) layered growth schematic,(b)layered growth laser confocal microscopy