

اثر تغییرات ریخت‌شناسی سطح بستر در رشد نانو کریستال‌های الماس به روش HFCVD

زهرا خلیج^{۱*} و فاطمه شهسواری^۲

۱- گروه فیزیک، واحد شهر قدس، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

۲- دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه میبد، یزد

چکیده

کربن یکی از فعالترین عناصر جدول تناوبی مندلیف با تعداد زیادی آلوتروپ است که از میان آنها، الماس به لحاظ خواص منحصر بفرد آن، همواره مورد توجه بسیاری از پژوهشگران قرار بوده است. از میان روشهای متنوع تولید الماس نانویی، روش رسوب دهی بخارات شیمیایی به کمک فیلامان داغ (HFCVD) از روش های متداول با بازده خوب و کم هزینه نسبت به سایر روش ها محسوب می‌شود. این مقاله، به بررسی اثر ریخت‌شناسی سطح و نحوه آماده سازی سطح بستر آلومینیوم در رشد و کیفیت نانو کریستالهای الماس به روش HFCVD پرداخته شده است. تغییر ریخت‌شناسی سطح در این مقاله با تغییر زبری روی سطح بررسی شده است. برای ایجاد زبری سطح متفاوت در نمونه‌ها از دستگاه پولیش زنی و خمیر الماس استفاده شده است و آنالیز بررسی تغییر ریخت‌شناسی سطح نمونه‌ها به کمک میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) انجام شده است. برای مقایسه بهینه نتایج آلومینیوم، از یک بستر سیلیکونی به عنوان مرجع که در شرایط یکسان با بسترهای آلومینیومی برای رشد کریستال‌های الماس قرار گرفتند، استفاده شده است. از گاز متان و هیدروژن با نسبت ۵ به ۱۰۰ و فلوئی کلی حدود ۳۰۰ sccm به برای مدت زمان ۶۰ دقیقه برای رشد کریستال‌های الماس بهره گرفته شد. نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس (XRD)، افزایش شدت و کیفیت الماس را با کاهش زبری بستر آلومینیومی را نشان دادند. از مقایسه نتایج بستر آلومینیوم در حالت بهینه با نتایج سیلیکون مشاهده شد که کیفیت رشد کریستال‌های الماس در آلومینیوم با میانگین زبری ۱۱/۳۷ nm از بستر مرجع سیلیکون بهتر است.

واژه‌های کلیدی: زبری سطح، ریخت‌شناسی، الماس، HFCVD

نویسنده مسئول: ایمیل z.khalaj@qodsiau.ac.ir

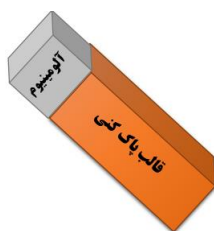
۱- مقدمه

الماس با داشتن ویژگی‌های منحصر بفرد به عنوان یک ماده خاص با ویژگی‌های شکست انگیز شناخته می‌شود که به دلیل سختی بالا، هدایت حرارتی و گاف نوری زیاد، دارای کاربردهای گسترده ای بعنوان پوشش‌های اپتیکی دارای مقاومت حرارتی و شیمیایی و پوشش‌های مکانیکی ضد خوردگی و فرسایش می باشند [۱-۳]. در طول تاریخ بشر همواره به دنبال تولید این ماده ارزشمند با استفاده از امکانات آزمایشگاهی بوده است که البته در سده ۱۹۰۰ با استفاده از روش‌های فشار بالا و دما بالا تا حدودی موفق به شبیه سازی این ماده ارزشمند شده است. با ورود تکنولوژی نانو فرایند تحت فشار گذاشتن عنصر کربن برای ایجاد پیوند و تشکیل آن به الماس جواهری، جای خود را به روش‌هایی در نقطه مقابل داد که با رها سازی اتم کربن و بوجود آوردن فضای مناسب برای انتخاب اتم کربن به پیوند با کربن دیگر و استفاده از کاتالیست‌های مناسب در دستگاههایی

جدید که با تکنولوژی خلا مجهز بودند زمینه برای تولید الماس نانویی و میکرویی برای کاربرد های صنعتی و پزشکی فراهم شد. از مهمترین روش‌های تولید نانو کریستالهای الماس، استفاده از روشهای متفاوت رسوب دهی بخار شیمیایی است که در این بین روش رسوب دهی بخار شیمیایی با فیلامان داغ (HFCVD^۱) به علت امکان ایجاد انرژی مورد نیاز برای رشد الماس، مورد توجه است [۴-۶]. پارامترهای موثر در رشد الماس با روش HFCVD، دمای فیلامان [۷، ۸]، نسبت گازهای واکنش دهنده [۹، ۱۰]، شدت جریان گازهای ورودی [۱۱]، دمای بستر و نحوه آماده‌سازی بسترها [۱۲، ۱۳] است.

برای رشد الماس مسلماً استفاده از بستر ضروری است که در این راستا از دو مدل بستر همگون و ناهمگون می‌توان استفاده نمود. نوع اول بسترهای همگون همان بسترهای الماسی هستند. یعنی الماس روی بستر الماس رشد داده می‌شود. هدایت این فرایند بسیار ساده هست و اتم کربن از یک الگوی از پیش تعیین شده استفاده کرده و آن را لایه به لایه دنبال می‌کند و لایه‌های جدید الماس نانویی و میکرویی شکل

کاهش اصطکاک و دقت در کار، شیر آب دستگاه در مرکز صفحه سمباده دوار تنظیم شد. برای نمونه S_3 از صفحه مخصوص سمباده با خمیر الماس^۱ $1\mu\text{m}$ روانکاو مخصوص خمیر الماس استفاده شد. مدت زمان پولیش کاری برای همه نمونه ها تا محو شدن ظاهری خطوط ذاتی سطح نمونه است. سرعت چرخش دستگاه پولیش 200rpm است. همه نمونه های آلومینیم و سیلیکون خام با استفاده از محلول استون، اتانول و آب مقطر در دستگاه آلتراسونیک به مدت ۱۵ دقیقه چربی زدایی شدند.



شکل ۱. طرحواره آماده سازی بستر آلومینیم و قالب سازی جهت انجام فرایند پولیش زنی سطح

بستر سیلیکون به عنوان مرجع و شاخص مقایسه برای بهینه نتایج رشد الماس انتخاب شد. پس از چربی زدایی با آلتراسونیک با لایه نازکی از طلا با روش کندوپاش مغناطیسی و مدت زمان ۱۰ دقیقه لایه نشانی شد. از لایه طلا به عنوان کاتالیست جهت تسریع فرایند رشد الماس استفاده شده است. استفاده از لایه نازک کاتالیستی طلا، موجب تسریع فرایند واکنش سنتر کریستال الماس می شود [۱۷، ۲۰]. ولتاژ اعمال شده در دستگاه اسپاترینگ بکار رفته در این آزمایش برابر ۲۰kV و گاز مورد استفاده برای ایجاد پلاسما، آرگون قرار داده شد. ضخامت لایه طلا نشاندهنده شده روی بستر سیلیکونی ۱۳nm است که با استفاده از آنالیز پس پراکندگی رادرفورد RBS بدست آمده است. بستر آلومینیم پولیش شده با سمباده S_1 را ۸۰۰، بستر پولیش شده با سمباده S_2 را ۱۰۰۰، بستر پولیش شده با خمیر الماس $1\mu\text{m}$ S_3 و بستر سیلیکون پوشش داده شده با طلا S_4 نامگذاری شده است.

به منظور رشد نانوساختارهای الماس در این آزمایش، از دستگاه رسوب گذاری بخار شیمیایی به کمک فیلامان داغ (HFCVD) استفاده شد [۲۳، ۲۴]. به منظور آماده سازی دستگاه جهت انجام آزمایش، ابتدا محفظه های دستگاه توسط پمپ های روتاری به فشار 10^{-6} Torr می رسند، آنگاه با استفاده از پمپ های دیفیوژن به فشاری در حدود 10^{-5} Torr رسانیده می شوند. همه نمونه ها پس از قرار گرفتن بر نگهدارنده نمونه، در داخل محفظه واکنش دستگاه قرار داده می شوند. محل قرار گیری نگهدارنده زیرلایه، روی کوره و در زیر فیلامان دستگاه که از جنس کربید تنگستن است، قرار داده می شود. فاصله فیلامان با بستر قابل تنظیم است که در این آزمایش حدوداً ۱۵mm در

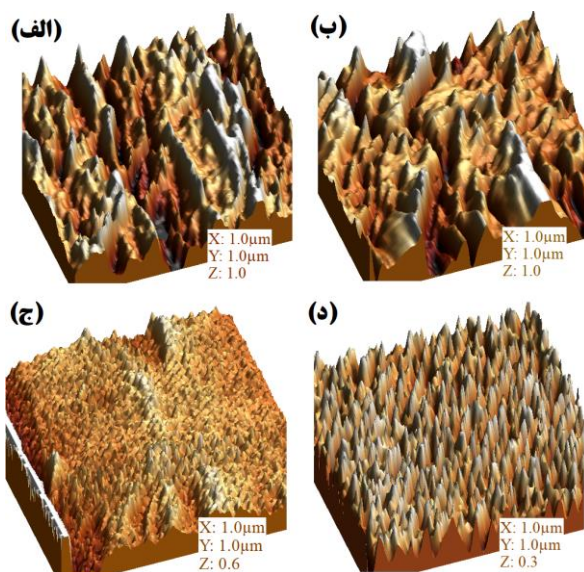
می گیرد. در نوع دوم یعنی استفاده از بستر ناهمگون، از هر نوع بستری بسته به کاربرد مورد نظر در صنعت مورد نظر می توان استفاده نمود که البته محدودیتهایی را در فرایند رشد در پی خواهد داشت. یکی از موارد مهم و موثر در رشد الماس بر روی زیرلایه غیر الماسی، نحوه آماده سازی بستر است [۱۴، ۱۵]. بعلاوه پایین بودن چگالی هسته زایی الماس، آماده سازی اولیه بستر از ملزومات سنتز موفق است. روشهای متفاوتی برای آماده سازی وجود دارد. به طور معمول از خراش مکانیکی یا حمام آلتراسونیک پودر الماس برای این منظور استفاده می شود تا با ایجاد نواقصی روی سطح زیرلایه مکان مناسب هسته زایی الماس را فراهم آورد [۱۲، ۱۶]. بدون خمیر الماس و توسط روش حکاکی سطح بستر با گازهای متفاوت نیز می توان شرایط لازم برای هسته زایی و رشد الماس روی بستری غیر الماسی نیز ایجاد کرد که در مقاله دیگری به بررسی مناسب ترین گاز و شرایط برای رشد نانوکریستال های متفاوت پرداخته شده است [۱۷]. با توجه به پژوهشات پیشین، کریستالهای الماس رشد یافته روی سطوح بستریهای سیلیکون و آلومینیم که تحت عملیات حکاکی با گاز هیدروژن قرار گرفتند دارای کیفیت بهتری در مقایسه با سایر حالات، گزارش شده اند [۱۷-۲۰].

در این پژوهش، هدف بررسی اثر ریخت شناسی سطح بستریهای آلومینیم در رشد نانوکریستال های الماس است. برای این منظور روی بستر های آلومینیم با روش پولیش زنی سطح با استفاده از خمیر الماس، میانگین زبری سطحی متفاوت ایجاد شد. برای مقایسه بهتر نتایج، از یک بستر سیلیکونی که به عنوان بستر مرجع در غالب فرایندهای رسوب دهی بخار شیمیایی جهت رشد کریستال الماس به کار می رود، استفاده شد [۲۱]. با توجه به بهینه نتایج حاصله از کارهای پیشین، در این مقاله از گاز هیدروژن به منظور انجام همه فرایندهای حکاکی استفاده شده است [۱۷، ۲۱، ۲۲].

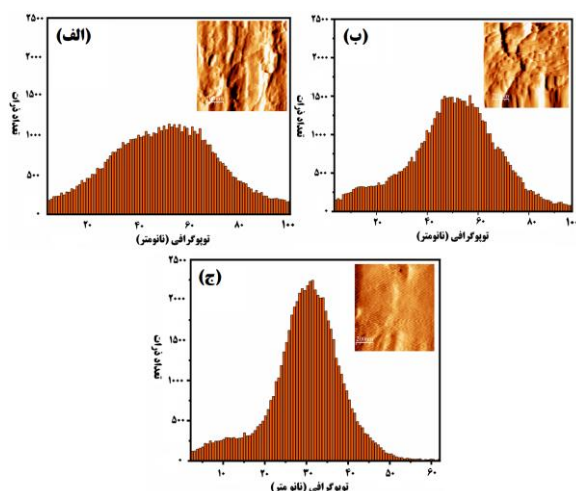
۲- مواد و روش

به منظور آماده سازی بستر برای رشد ساختارهای الماس، از بستر سیلیکون نوع P که به عنوان بستر مرجع برای سنتز الماس شناخته می شود، استفاده شد. در این پژوهش، از بستر سیلیکون با ابعاد $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ و بستریهای آلومینیوم با خلوص ۹۹/۹۹٪ و به ابعاد $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ استفاده شده است. به منظور پولیش کاری نمونه های آلومینیمی، قالب های مکعب مستطیل با استفاده از پاک کن به ابعاد $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 40\text{ mm}$ ساخته شده و نمونه ها با استفاده از چسب قطره ای بدان چسبیده شد (شکل ۱). نمونه ها با زاویه ۹۰ درجه روی صفحه سمباده دوار با فاصله ۵cm از مرکز ثابت نگه داشته شد. برای گرفتن زیر لایه ها روی صفحه پولیش به گونه ای تنظیم شد که خطوط ذاتی زیر لایه بر جهت حرکت سمباده عمود باشد. عملیات سمباده برای نمونه S_1 و S_2 به ترتیب با صفحه سمباده ۸۰۰ و ۱۰۰۰ انجام گرفت. به منظور

^۱ Diamond paste



شکل ۲. تصویر AFM سه بعدی مربوط به نمونه های الف) آلومینیم پولیش شده با صفحه سمباده ۸۰۰ (S₁)، ب) آلومینیم پولیش شده با صفحه سمباده ۱۰۰۰ (S₂)، ج) آلومینیم پولیش شده با خمیر الماس ۱ میکرومتر (S₃)، د) سیلیکون پوشش داده شده با طلا (S₄)



شکل ۳. نمودار توپوگرافی و تصویر دو بعدی AFM از سطح مربوط به نمونه های آلومینیم پولیش شده با روش های متفاوت الف) S₁ ب) S₂ ج) S₃

نمودار گوسین با پهنای کمتر و تقارن بیشتر و ارتفاع نسبی بالاتر نشان دهنده کوچک بودن بازه توزیع سطحی و نزدیکی میانگین سائیزی خلل و فرج های ایجاد شده در سطح است. شکل (۳) مکان قله در نمودار و کاهش میانگین پهنای پیک به تدریج از نمونه S₁ تا S₃ برقراری تجانس بیشتر در سطح نمونه را نشان می دهد. نتایج مطالعات میکروسکوپ نیروی اتمی با میانگین زبری برای شکل ۲ (الف-د) به ترتیب ۲۱/۰۵nm، ۱۸/۸۶nm، ۱۱/۳۷nm و ۱/۷۵nm است که در جدول زیر آمده است.

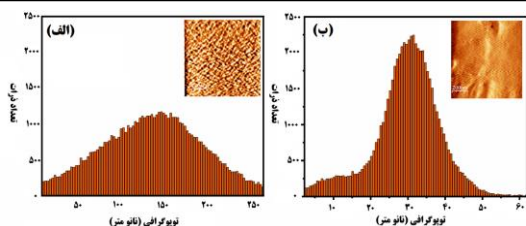
نظر گرفته شد. در مرحله اول، هر کدام از بسترهای آلومینیم و سیلیکون در شرایط کاری یکسان با استفاده از گازهیدروژن تحت عملیات حکاکی سطح قرار گرفتند. این امر به منظور ایجاد مکان های مناسب و ایجاد همگونی مورد نظر و همچنین، بالا بردن میزان تخلخل در سطح بستر است [۲۷، ۲۶، ۲۵، ۲۰]. ایجاد تخلخل سطحی منجر به تغییر ریخت شناسی سطح شده و با توجه به نوع نانوساختار محصول و با استفاده از گاز مناسب، به منظور کمک به افزایش امکان هسته زایی اولیه، در رشد نانو ساختارهای کربنی است. ایجاد زبری مناسب بر سطح فرایند به دام انداختن ذرات یونیزه شده کربن را تسهیل نموده و نرخ هسته زایی را افزایش می دهد. هر کدام از بسترها به مدت ۴۵ دقیقه، تحت عملیات حکاکی قرار گرفتند. به منظور انجام فرایند رشد الماس، از ترکیب گازهای CH₄ به عنوان گاز واکنش دهنده و H₂ به عنوان رقیق کننده به نسبت (CH₄/H₂: 5%) به مدت ۶۰ دقیقه، استفاده شد. دمای بسترها در زمان رشد کریستالهای الماس حدوداً ۵۰۰°C نگه داشته شدند که این میزان در فرایند رشد افزایش داده شد. شدت جریان کلی گازهای وارد شده به سیستم ۳۵۰ sccm و با فشار کاری ۳۰ Torr برای تمامی نمونه ها بصورت یکسان بکار گرفته شد.

برای بررسی زبری سطح، از آنالیز میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM, XE-NSOM, in contact mode) و به منظور بررسی ریخت شناسی سطح و کریستالیت ها نمونه ها به ترتیب از آنالیزها میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM, KYKY, EM3200)، و پراش پرتوی ایکس ایکس (X'Pert Pro MPD, PANalytical, Cu Kα, λ=0.1541 nm) استفاده شده است.

۳- نتایج و بحث

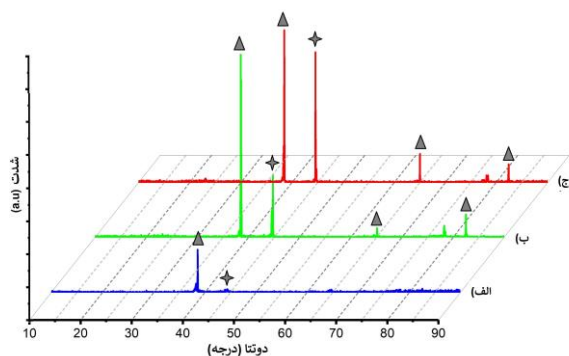
در شکل ۲، تصاویر سه بعدی میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) نشان داده شده است. در تصاویر زیر ریخت شناسی سطح بسترهای آلومینیم پولیش شده به سه روش و یک رفرنس مرجع سیلیکون لایه نشانی شده با طلا نشان داده شده است. همه نمونه ها پیش از قرارگیری در دستگاه HFCVD در مرحله آماده سازی پیش از رشد، با آنالیز AFM مورد بررسی قرار گرفتند.

در شکل (۲) نقاط روشن تر نشان دهنده قله ها و نقاط تیره تر نشان دهنده دره ها هستند در شکل (۲) الف و ب که هر دو با استفاده از صفحه سمباده دوار پولیش شده اند تغییرات زبری سطح تا حدودی غیر یکنواختی دارد که این تغییرات در نمونه S₂ نسبت به S₁ کمتر است و میانگین تعداد نقاط با زبری کمتر را می توان روی سطح بیشتر مشاهده نمود. از سوی دیگر این تغییرات در نمونه S₃ به حداقل می رسد. شکل (۳) توپوگرافی سطح نمونه های آلومینیم را نشان می دهد. با در نظر گرفتن توپوگرافی هر سه نمونه به همراه تصاویر دو بعدی در کنار شکل (۲) به وضوح می توان افزایش همگنی در توزیع نانوذرات و کاهش زبری سطح را مشاهده کرد.



شکل ۴. نمودار توپوگرافی سطح و تصویر دو بعدی AFM مربوط به نمونه (الف) نمونه مرجع (S_4) و (ب) آلومینیم بهینه (S_3)

برای بررسی ساختار بلوری و کیفیت نمونه های سنتز شده از آنالیز پراش پرتو ایکس استفاده شده است که در شکل (۵) نشان داده شده است. پیک اصلی الماس، $2\theta \approx 44.5^\circ$ ، در همه نمونه ها با شدت های متفاوت مشاهده می شود، که نشان دهنده رشد کریستال الماس است [۲۹، ۲۸، ۲۱] در شکل ساختارهای الماس با نماد (♦) و فازهای زیرلایه آلومینیم با نماد (▲) مشخص شده است. مقایسه طیف های XRD بین نمونه آلومینیم با زبری متفاوت، تغییر شدت قله الماس نسبت به قوی ترین قله مربوط به آلومینیم در $2\theta \approx 38.5^\circ$ را نشان می دهد. در جدول ۲، نتایج شناسایی فازها و تغییرات شدت قله ها ارائه شده است. در نمونه با بیشترین زبری (S_1)، زیرلایه شدت نسبی قله الماس حدود ۵٪ بود با کاهش زبری این مقدار در نمونه های S_2 و S_3 به ترتیب برابر با ۲۱٪ و ۶۹٪ شده است که حاکی از کیفیت بهتر فاز الماس است.



شکل ۵. طیف XRD برای کریستالهای الماس سنتز شده روی بسترهای آلومینیم با میانگین زبری سطح متفاوت: (الف) میانگین زبری ۲۱/۰۵ نانومتر (S_1) (ب) میانگین زبری ۱۸/۸۶ نانومتر (S_2) و (ج) میانگین زبری ۱۱/۳۷ نانومتر (S_3).

درطیف XRD، ماکزیمم نیم پهنای (Full width half maximum: FWHM) اطلاعات جامع و مفیدی در رابطه با اندازه بلورک های الماس رشد یافته بر بستر ارائه می دهد. بدین ترتیب که، با توجه معادله شرر هرچقدر پیک ها دارای ماکزیمم نیم پهنای کوچکتر و شدت بالاتری باشند، کریستالهای الماس سنتز شده روی بستر دارای اندازه دانه های بالاتری هستند [۱۷].

جدول ۱: نتایج مطالعات آنالیز AFM مربوط به نمونه های آلومینیم و نمونه مرجع سیلیکون

میانگین زبری (نانومتر)	جذر میانگین مربعات (نانومتر)	گاز واکنش دهنده	گاز حاکاکی	نوع بستر	کد نمونه
۲۱/۰۵	۲۵/۵۵	CH_4/H_2	H_2	Al	S_1
۱۸/۸۶	۲۲/۲۰	CH_4/H_2	H_2	Al	S_2
۱۱/۳۷	۱۳/۶۸	CH_4/H_2	H_2	Al	S_3
۱/۷۵	۲/۲۱	CH_4/H_2	H_2	Si	S_4

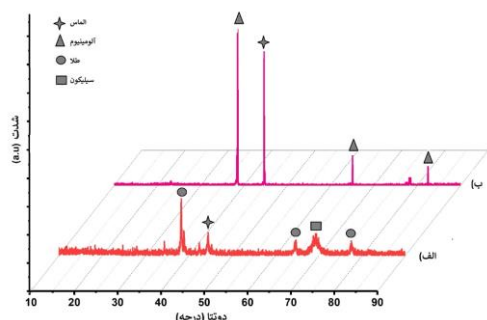
که در جدول بالا زبری سطح (R_{RMS}) را می توان با استفاده از فرمول (۱) محاسبه کرد [۲۷-۲۵]

$$R_{RMS} = \sqrt{\frac{\sum_{n=1}^N (Z_n - \bar{Z})^2}{N-1}} \quad (1)$$

$$\bar{Z} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N Z_n \quad (2)$$

که در آن N تعداد نقاط داده ها و $\bar{Z}$ میانگین ارتفاع Z است. با توجه به نتایج آنالیز میکروسکوپ نیروی اتمی، میانگین زبری در شکل ۱ (الف) الی (ج) از مقدار ۲۱/۰۵ نانومتر به میزان ۱۱/۳۷ نانومتر کاهش یافته است. با استفاده از نتایج میکروسکوپ نیروی اتمی، هیستوگرام سطح در شکل (۲) نشان دهنده تغییرات زبری و مدل توزیع پستی و بلندی های سطح بسترهای آلومینیم است. این نمودار فراوانی بر اساس توپوگرافی نمونه های آلومینیم که با استفاده از آنالیز میکروسکوپ نیروی اتمی به دست آمده است را نشان می دهد. در این نمودار شکل (الف) تا (ج) به ترتیب مربوط به نمونه های S_1 ، S_2 و S_3 هستند.

پهنای نمودار گوسی هیستوگرام مذکور را می توان شاخصی برای تعیین زبری سطح قرار داد. به این ترتیب تغییرات پهنای نمودار نشان دهنده تغییرات زبری سطح است. هر چقدر پهنای نمودار بیشتر باشد، تغییرات زبری سطح نمونه مورد نظر بیشتر است. همچنین، نتایج بررسی ها نشان می دهد که نمودارهای گوسی در شکل (۴) از قاعده سه زیگما تبعیت می کند. مقایسه بهینه نتایج نمونه آلومینیم و سیلیکون مرجع در شکل (۴) آمده است. نتایج نمودارها نشان می دهد در نمونه سیلیکون شاهد پهنای بیشتر نمودار گوسین و توزیع ناهمگنی سطح در محدوده حدودی ۱ تا ۲۵۰ نانومتری بر حسب مقیاس تحت آنالیز شاهد هستیم اما در نمونه بهینه آلومینیم بازه توزیع تا مقدار تقریبی کمتر از شصت نانومتر است و بیشترین تراکم توزیع سایزی دردها و قله ها بر حسب شکل در بازه بیست تا چهل نانومتر است که نشان دهنده ایجاد فضای مناسب برای رشد و هسته زایی اولیه الماس است.



شکل ۶: آنالیز XRD برای کریستالهای الماس سنتز شده روی بستر آلومینیم بهینه و سیلیکون رفرنس (الف) آلومینیم بهینه (S₃) (ب) سیلیکون پوشش داده شده با نانولایه طلا (رفرنس)

جدول ۳: نتایج طیف پراش پرتو ایکس نمونه سیلیکون (رفرنس)

نام نمونه	نوع بستر	محل پیک (2θ)	ساختمان مربوطه	شدت نسبی	پهنای قله
Si-Au (S ₄)	۳۸/۳	Au(111)	% ۱۰۰	۰/۲۶۶	۳۸/۳
	۴۴/۵	D (111)	% ۲۵	۰/۳۱۵	۴۴/۵
	۶۴/۶	Au (220)	% ۲۷/۳	۰/۰۹۵	۶۴/۶
	۶۹/۳	Si (400)	% ۲۱/۶	۰/۱۴۵	۶۹/۳
	۷۷/۵	Au (311)	% ۱۴	۰/۳۱۵	۷۷/۵

تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از نمونه بهینه آلومینیم با کمترین زبری (S₃) و نمونه سیلیکون مرجع در شکل ۷ نشان داده شده است. شکل ۷ (الف، ب) ریخت‌شناسی سطح نمونه آلومینیم بهینه (S₃) را به صورت انتخابی و به‌عنوان بهترین نمونه در مقایسه با چند نمونه مورد آزمایش نشان می‌دهد. در این پژوهش، برای افزایش هسته‌زایی دانه‌های الماس، از حاکای گاز هیدروژن قبل از مرحله رشد الماس بهره گرفته شد. نوع گاز حاکا بر حسب سایز اتمی و منبع استفاده شده جهت یونیزاسیون گاز، باعث بوجود آمدن خلل و فرج و زبری متفاوت روی سطح می‌شود [۲۳، ۱۷]. این حاکا، مکان‌های مناسب برای به دام افتادن اتم‌های کربن و شکل‌گیری هسته‌های اولیه الماس را ایجاد می‌کند. در فرآیندی مشابه، کاهش زبری آلومینیم، باعث ایجاد خلل و فرج‌های ریزی روی سطح می‌شود. می‌توان اینگونه عنوان کرد که هر چقدر میانگین زبری کمتر باشد و همچنین، توزیع این زبری‌ها دارای پهنای قله کمتری باشد، به معنای وجود نقاط مناسب به منظور شکل‌گیری هسته‌های اولیه بیشتر در مقایسه با زبری بالا است. بنابراین، با کاهش زبری، رشد دانه‌های الماس بیشتری بر سطح اتفاق می‌افتد که باعث افزایش پیک نسبی XRD الماس بر سطح آلومینیم‌ها است.

با استفاده از فرمول شرر و داده‌های جدول ۲، اندازه بلورک‌های الماس در نمونه آلومینیم که دارای بهینه شرایط است، معادل ۱۲۸ نانومتر بدست آمد که نشان‌دهنده شکل‌گیری کریستال-های با سایز مناسب در نمونه آلومینیم با حداقل زبری سطح است.

جدول ۲: نتایج طیف پراش پرتو ایکس نمونه‌های آلومینیم با زبری اولیه متفاوت

نام نمونه	محل پیک (2θ)	ساختمان مربوطه	شدت نسبی	پهنای قله (FWHM)	نماد در طیف
S ₁	۳۸/۶	Al (111)	۱۰۰%	۰/۰۷۲	▲
	۴۴/۴	D (111)	% ۵/۴	۰/۶۳۰	◆
S ₂	۳۸/۵	Al (111)	۱۰۰%	۰/۰۹۸	▲
	۴۴/۶	D(111)	% ۲۱	۰/۰۷۲	◆
	۶۵	Al (220)	% ۴/۹	۰/۰۷۲	▲
	۸۲/۴	Al (222)	% ۱۳/۵	۰/۰۷۲	▲
S ₃	۳۸/۵	Al (111)	% ۱۰۰	۰/۰۵۹	▲
	۴۴/۶	D (111)	% ۶۸/۹	۰/۰۷۲	◆
	۶۵	Al (220)	% ۱۴/۲	۰/۰۷۲	▲
	۸۲/۵	Al (222)	% ۵/۳	۰/۱۴۴	▲

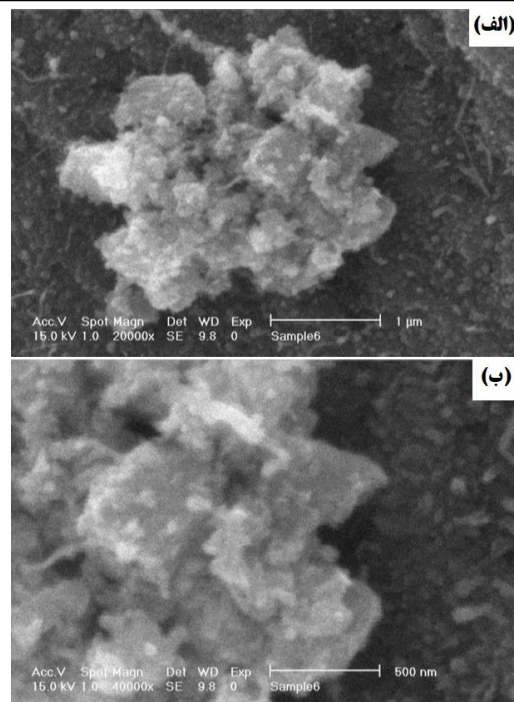
لازم به اشاره و یادآوری است که آنچه که توسط تقریب شرر به دست می‌آید نشان دهنده اندازه بلورک‌ها یا دانه است و لزوماً متناسب یا برابر با اندازه ذرات نیست. اندازه بلورک‌ها روی خواص مکانیکی پوشش مانند سختی، استحکام، چقرمگی و غیره موثر است که در این پژوهش مد نظر بررسی نبود.

بستر سیلیکون به لحاظ کاربرد و خواص بستر مناسبی برای رشد کریستال الماس است و نتایج زیادی توسط محققان در رابطه با رشد کریستالهای الماس روی بستر سیلیکون گزارش شده است. پس، از بهینه شرایط رشد نانوکریستالهای الماس روی بستر سیلیکون که در شرایط یکسان با این مقاله سنتز شد، به عنوان شاخصی مرجع برای مقایسه کیفی کریستالهای الماس رشد داده شده در این مقاله استفاده شده است [۱۷]. همانطور که نتایج آنالیز پراش پرتو ایکس برای بستر سیلیکون (S₄) در شکل ۶ و جدول ۳ آمده است؛ دارای پیک الماسی با جهت‌گیری (۱۱۱) برای زاویه $2\theta \cong 38.3^\circ$ است. شدت نسبی قله الماس به قله مربوط به پوشش طلا در $2\theta \cong 38.3^\circ$ برابر با ۲۵٪ است.

نتایج XRD نمونه بهینه آلومینیمی و نمونه شاهد سیلیکونی (شکل ۶ و جدول ۳) نشان می‌دهد که شدت و کیفیت قله الماس در نمونه با کمترین زبری آلومینیم (S₃) داری بیشترین شدت نسبی و قله بهتری است. بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که با توجه به نتایج FWHM و شدت هر پیک کیفیت ساختار نانوکریستالهای الماس تولید شده بر بستر آلومینیم در حالت بهینه بهتر از سیلیکون مرجع بهتر است.

۵. منابع

- [1] J. Peng, J. Zenga, C. Xiong, L. Li. The effect of interlayer reactivity on the quality of diamond coating by HFCVD deposition, *Journal of Alloys and Compounds*, 835, 155035, (2020).
- [2] N. Yang. *Novel Aspects of Diamond: From Growth to Applications*: Springer International Publishing; 2020.
- [3] A.V. Gaydaychuk, S.A. Linnik, S.P. Zenkin. High temperature tribology of heavily boron doped diamond films against steel, *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 88, 105191, (2020).
- [4] R. Sachan, A. Bhaumik, P. Pant, J. Prater, J. Narayan. Diamond film growth by HFCVD on Q-carbon seeded substrate, *Carbon*, 141, 182-9, (2019).
- [5] J. Peng, C. Xiong, J. Liao, J. Liao, L. Yuan, L. Li. Study on the effect of Ar-containing work gas on the microstructure and tribological behavior of nanocrystalline diamond coatings, *Tribology International*, 153, 106667, (2021).
- [6] K.H. Lee, W.K. Seong, R.S. Ruoff. CVD diamond growth: Replacing the hot metallic filament with a hot graphite plate, *Carbon*, 187, 396-403, (2022).
- [7] Y. Takamori, M. Nagai, T. Tabakoya, Y. Nakamura, S. Yamasaki, C.E. Nebel, X. Zhang, T. Matsumoto, T. Inokuma, N. Tokuda. Insight into temperature impact of Ta filaments on high-growth-rate diamond (100) films by hot-filament chemical vapor deposition, *Diamond and Related Materials*, 118, 108515, (2021).
- [8] F. Lu, Z. Fu, X. Bai, T. Hao, T. Liu, T. Zheng. Research on the growth state and performance of diamond coatings based on different carbon source concentration and temperature, *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures* 1-9, (2022).
- [9] S.A. Rakha, S. Yang, Z. He, I. Ahmed, D. Zhu, J. Gong. Synthesis of thin diamond films from faceted nanosized crystallites, *Journal of Current Applied Physics*, 9, 698-702, (2009).
- [10] H. Wang, C. Wang, X. Wang, F. Sun. Effects of carbon concentration and gas pressure with hydrogen-rich gas chemistry on synthesis and characterizations of HFCVD diamond films on WC-Co substrates, *Surface and Coatings Technology*, 409, 126839, (2021).
- [11] M. Ali, M. Ürgen. Surface morphology, growth rate and quality of diamond films synthesized in hot filament CVD system under various methane concentrations, *Applied Surface Science*, 257(20), 8420-6, (2011).



شکل ۷: (الف و ب) تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از نمونه بهینه آلومینیم با میانگین زبری سطح ۱۱/۳۷ نانومتر در دو مقیاس متفاوت

۴. نتیجه گیری

در این مقاله، به بررسی رشد نانو کریستالهای الماس روی بسترهای آلومینیم با میانگین زبری متفاوت پرداخته شد. به منظور مقایسه کیفی ساختارهای کریستالی الماس رشد یافته روی بستر آلومینیم در حالت بهینه، از بستر سیلیکون پوشش داده شده با طلا که در شرایط یکسان با نانو کریستالهای الماس پوشش داده شده است، استفاده شد. برای افزایش هسته زایی دانه های الماس، از حکاکی گاز هیدروژن قبل از مرحله رشد الماس بهره گرفته شد. نتایج به دست آمده نشان داد که بهینه رشد نانو کریستالهای الماس، در بستر آلومینیم با حداقل میانگین زبری سطح (۱۱/۳۷nm) است. بدین ترتیب نتایج نشان داد که کاهش میانگین زبری اولیه سطح در بستر آلومینیم منجر به افزایش کیفی رشد کریستال الماس می شود. در مقایسه کریستالهای الماس سنتز شده روی بستر آلومینیم با بستر مرجع سیلیکون پوشش داده شده با طلا، ملاحظه شد که با توجه به شدت پیک در نانو کریستالهای رشد یافته روی بستر آلومینیم در طیف پراش پرتو ایکس و پایین بودن FWHM آن در مقایسه با نمونه سیلیکون، کیفیت کریستالهای الماس رشد یافته، بسیار بالاتر است.

- [22] W.S.C. Deok Yong Yun, Yong Seob Park. Effect of H₂ and O₂ plasma etching treatment on the surface of diamond-like carbon thin film, *Applied Surface Science*, 254(23), 7925-8, (2008).
- [23] Z. Khalaj, Ghoranneviss, M., Vaghri, E., Ponta O. Diamond and Diamond like carbon. In: Vasile Diudea M, & Nagy, S., editor. *Diamond and Related Nanostructures: Carbon Materials: Chemistry and Physics* 6: Springer; 2013. p. 29-48.
- [24] M. Ghorannevis, M.M. Larijani, M. Eshghabadi, A. Shokouhi, P. Alizadeh, S. Nasiri. Designee, Fabrication And Application Of Hfcvd In Growth Of Nanostructures, *Journal of sciences (Islamic Azad university)* 18(67), 11-8, (2008).
- [25] S. Wang, S. Xia, H. Wang, Z. Yin, Z. Sun. Prediction of surface roughness in diamond turning of Al6061 with precipitation effect, *Journal of Manufacturing Processes*, 60, 292-8, (2020).
- [26] J. Vieira, A. Contin, M.A. Fraga, E.J. Corat, V.T. Airoidi. Growth and characterization of multilayer hot-filament chemical vapor deposition diamond coatings on WC-Co substrates, *Surface Innovations*, 7(1), 36-43, (2019).
- [27] W. Xiao, H. Deng, S. Zou, Y. Ren, D. Tang, M. Lei, C. Xiao, X. Zhou, Y. Chen. Effect of roughness of substrate and sputtering power on the properties of TiN coatings deposited by magnetron sputtering for ATF, *Journal of Nuclear Materials*, 509, 542-9, (2018).
- [28] P.R. Riley, P. Joshi, J. Narayan, R. J.Narayan. Enhanced nucleation and large-scale growth of CVD diamond via surface-modification of silicon-incorporated diamond-like carbon thin films, *Diamond and Related Materials*, 120, 108630, (2021).
- [29] S. Islak, C. Özörak, N.M.E. Abouacha, U. Çalgül, V. Koç, Ö. Küçük. The effects of the CNF ratio on the microstructure, corrosion, and mechanical properties of CNF-reinforced diamond cutting tool, *Diamond and Related Materials*, 119, 108585, (2021).
- [12] T. Zhang, Q. Feng, Z. Yu, L. Zhang, F. Sun. Effect of mechanical pretreatment on nucleation and growth of HFCVD diamond films on cemented carbide tools with a complex shape, *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 84, 105016, (2019).
- [13] X. Shen, X. Wang, F. Sun, C. Ding. Sandblasting pretreatment for deposition of diamond films on WC-Co hard metal substrates, *Diamond and Related Materials*, 73, 7-14, (2017).
- [14] S. Fan, T. Kuang, W. Xu, Y. Zhang, Y. Su, S. Lin, D. Wang, H. Yang, K. Zhou, M. Dai, L. Wang. Effect of pretreatment strategy on the microstructure, mechanical properties and cutting performance of diamond coated hardmetal tools using HFCVD method, *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 101, 105687, (2021).
- [15] P.R. Riley, P. Joshi, J. Narayan, R.J. Narayan. Enhanced nucleation and large-scale growth of CVD diamond via surface-modification of silicon-incorporated diamond-like carbon thin films, *Diamond and Related Materials*, 120, 108630, (2021).
- [16] N. Jiang, S. Kujime, I. Ota, T. Inaoka, Y. Shintani, H. Makita, A. Hatta, A. Hiraki. Growth and structural analysis of nano-diamond films deposited on Si substrates pretreated by various methods, *Journal of Crystal Growth*, 218(2-4), 265-71 (2000).
- [17] Z. Khalaj, M. Ghoranneviss, S. Nasirilaheghi, Z. Ghorannevis, R. Hatakeyama. Growth of nano crystalline diamond on silicon substrate using different etching gases by HFCVD, *Chinese Journal of Chemical Physics*, 23(6), 689, (2010).
- [18] H. Atefi, M. Ghoranneviss, Z. Khalaj, M.V. Diudea. Effect of different substrate temprature on growth of nano crystalline diamond by HFCVD technique *CHEMIA*, 56(3), 171-8, (2011).
- [19] Z. Khalaj, M. Ghoranneviss. Investigation of metallic nanoparticles produced by laser ablation method and their catalytic activity on CVD diamond growth, *Studia Univ Babes-Bolyai Chemia* 57, 21-8, (2012).
- [20] F. Shahsavari, M. Ghoranneviss, Z. Khalaj, M. Diudea. Effect of Catalyst layer thickness on growth of CVD diamond, *Studia UBB Chemia*, 56(3), 257 - 65, (2011).
- 21] Z. Khalaj, S. Taheri, S.N. Laheghi, P.A. Eslami. Diamond growth on aluminium substrate by HFCVD using different etching gasses, *Iranian Physical Journal*, 3(1), 19-22, (2009).

Effect of Different Surface Morphology on Growth of Nanocrystalline Diamond by HFCVD

Z. Khalaj¹ and F. Shahsavari²

1- Department of Physics, Shahr-e-Qods Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

2- Engineering department, Meybod university, Yazd, Iran

Abstract:

Carbon is one of the most important elements in Periodic Table which consist of several allotropes. Among various allotropes of carbon, Diamond is one of the remarkable one because of its outstanding properties which attracts many researchers. There is various method for diamond production that Hot filament Chemical Vapor Deposition (HFCVD) is most commercial due to its low cost and high production ratio in comparison with other methods. In this paper, the effect of surface morphology variance and treatment methods on surface roughness were investigated. The substrate was polished with Diamond paste and polishing system. The roughness of the substrates was analyzed with Atomic Force Microscopy (AFM). The result of the optimum Al substrate was compared with Si-Au substrate as a reference. A combination of CH₄/H₂ with 5% flow ratio and 300 sccm flow ratio for 60 minutes was fed into the reaction chamber. The result of the X-ray diffraction method (XRD) illustrated the high intensity and high-quality diamond production was obtained with decreasing the Aluminum surface roughness. The results show that the quality of the diamond in Al substrate with 11.37nm average roughness is better than silicon coated gold as a reference.

Keywords: Surface roughness, Morphology, Diamond, HFCVD