

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 胡 明輝

電子デバイスの性能向上に伴い、成膜プロセス、特にその極初期過程の理解と制御に関する要請が高まっている。本論文は、「透過型電子顕微鏡による金属薄膜のナノスケールでの初期成長の研究」と題し、実プロセスに近い条件でのスパッタ法による成膜を対象に、初期成長薄膜の構造を高分解能電子顕微鏡によって直接に観察し、機構解明だけでなく構造制御の観点から検討し、初期膜の構造を決める重要な支配因子の抽出とモデルの提案を行ったものであり、全8章から成る。

第一章では、金属薄膜の初期成長の現状と課題をまとめ、問題点を明確にした上で、本研究の目的、内容と特色を述べている。特に、成長初期の薄膜構造を、熱力学的に決定される単位構造の内部構造と外部形状、及び動力学的に決定される単位構造集合体の特性に分けることを提案し、研究課題を明確化している。

第二章では、成長モード、即ち単位構造がどの様に決まるかを説明するモデルを提案した。具体的には、表面・界面エネルギーの尺度として、金属の昇華熱と酸化熱という二つの熱力学的因子を選択し、これらから導かれるパラメーターを軸とした2次元空間上に、単結晶  $\text{TiO}_2(110)$  上の金属薄膜の成長モードが整理できることを示した。入手容易な昇華熱と酸化熱によって整理できることは実用上非常に重要であり、この手法は他の材料系にも応用が可能である。

第三章では、後続の章での初期成長過程の実験的検討の手法について説明した。

第四章では、 $\text{SiO}_2$  表面上で、親和性の低い  $\text{Cu}$  の初期成長機構を検討し、成膜種と基板の界面相互作用が、微粒子形成と成長に大きな影響を与えることを示している。成膜初期の非濡れ性微粒子のサイズ・間隔・数密度、さらに結晶構造の変化を観察し、Gibbs-Thomson式に基づく2次元蒸気圧の変化、及び吸着原子の表面拡散に関する境界膜厚さの変化を考慮するモデルを提案した。

第五章では、 $\text{SiO}_2$  表面上で、親和性の高い  $\text{Cr}$  の初期成長機構を検討した。成膜中にアモルファスから結晶へ構造が変化する現象を、高分解能電子顕微鏡により見出し、この相変化を古典的な熱力学モデルにより説明した。更に、成膜に伴う  $\text{Cr}$  微粒子の構造変化を  $\text{Cu}$  と比較し、界面相互作用の観点から説明した。

第六章では、基板表面を有機分子および金属中間層で修飾し、成膜種と基板の界面相互

作用を変えることで、界面相互作用が初期成長に及ぼす影響を検討した。成膜種と基板間の相互作用を強くするにつれ、非配向で非濡れ性の球状 Cu ナノ粒子から、高配向で濡れ性の半球状 Cu ナノ粒子へと変化することが分かり、適切な中間層の導入による膜構造制御が可能であることを示した。

第七章では、以上の金属薄膜の初期成長の検討に基づき、薄膜成長の次元、成長に伴う結晶構造変化、及び微粒子の数密度・間隔・サイズ変化を説明する、三因子モデルを提案した。このモデルにより初期成長の多様な現象の統一的理解が可能になる。さらに今後、モデルに含まれる三つの因子の定量的評価が可能になれば、膜構造の制御に大きく寄与するものと期待される。

第八章は、本論文のまとめと展望である。

以上、本論文は、金属薄膜の初期成長における成長機構をナノスケールで解明するとともに、成膜物質と基板間の界面相互作用による構造制御の可能性を明らかに示したものである。これらの研究成果は、薄膜プロセス工学の基盤を確立することに役に立ち、化学システム工学の発展に大いに寄与するものである。よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。