

論文審査の結果の要旨

氏名 町田 真一

シリコン単結晶の(100)表面は、半導体デバイスの作成でもっとも良く使われている表面である。表面の構造や化学反応性を原子レベルで解明することは、基礎科学だけでなくナノメートルスケールでの反応制御や構造の構築など応用面からも重要である。本論文は6章からなり、第1章は序論、第2章は実験法、第3章は測定法の基本原理、第4章は低温Si(100)表面における非対称ダイマーの実証、第5章はSi(100)表面の非対称ダイマーの反応性、そして第6章では結論が述べられている。

第1章では、研究の背景を述べ、これまでに知られている実験的および理論的研究のレビューを行い、本研究の位置づけを行なった。

第2章は、本論文で用いられた実験装置および実験条件について述べられている。実験は全て超高真空(UHV)チェンバー内で行われた。このUHVチェンバーには、光電子分光(PES)、低速電子回折(LEED)、残留ガス質量分析のための分析装置と試料ホルダー、ガス導入装置などが設置されている。特に、高分解能PESで用いる電子分光器、励起光源としてのシンクロトロン放射光、申請者が設計した冷却試料ホルダーについてはやや詳しく記述されている。また使用した化学物質についても記述している。

第3章では、光電子分光の原理と解析方法について述べられている。

第4章では、低温Si(100)表面のシリコンダイマーが非対称であることを高分解能Si2p光電子分光をもちいて実証した実験について詳しく述べられており、本博士論文のもっとも重要な成果である。Si(100)表面のシリコン原子はダイマーを形成することが既に実験的・理論的に確立している。このダイマーは、下部Si原子から上部Si原子に電荷移動がおり構造が非対称で、200K以下の低温では非対称ダイマーが長周期的に規則配列し $c(4 \times 2)$ 構造を形成するが、この温度より高い領域では規則不規則転移が起り非対称ダイマーがランダムに配列することが知られていた。しかし最近、80K以下の低温領域で走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いて観察すると、

ダイマーが対称に見えることが報告され、議論となっている。STM測定と異なる方法でSi(100)表面の構造・電子状態を調べることが不可欠であった。本論文では、高分解能Si2p光電子分光を用いて、試料温度を300Kから30Kまで変化させてスペクトルを測定し、ピークの位置・強度・形状について詳細に解析した。その結果、この温度領域においてダイマーの基底状態は非対称であることを実証した。

第5章では、非対称ダイマーの化学反応性を調べるために、ルイス酸であるBF₃、ルイス塩基であるピリジン、トリメチルアミンを表面に吸着させた実験について記述されている。高分解能Si2p光電子分光と価電子帯光電子分光により吸着状態を調べた。BF₃はSi-BF₂とSi-Fに解離吸着するが、非対称ダイマーの上部Si原子が優先的に反応することが解明された。また、ピリジンには複数の吸着状態があること、トリメチルアミンは解離吸着している可能性が高いことを示した。これらの結果から、非対称ダイマーの化学反応性について議論を行っている。

第6章は結語であり、本論文によって実証されたSi(100)表面におけるダイマーの低温における電子状態と構造、非対称ダイマーの化学反応性についてまとめられている。

本論文は、高分解能内殻光電子分光を主たる実験測定に用いて、Si(100)表面に存在するダイマーの構造と化学反応性について調べたものである。特に、30Kまでの低温領域でSi(100)表面のダイマーが非対称であることを分光学的に実証し、この問題に決着をつけたことは、極めて重要である。さらに、非対称ダイマーの電子状態の違いに着目して典型的なルイス酸・ルイス塩基分子を吸着させ、サイト選択的表面反応について新たな知見を得た点で、高い価値がある。

なお、本論文の第2章、第4章、第5章は、吉信淳、山下良之、向井孝三、長尾昌志、山本達、掛札洋平との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験とその解析を行なったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって審査員全員により、博士（理学）の学位を授与できると認めた。