

## 審査の結果の要旨

氏名 吳 相文

原子レベルでの薄膜成長制御技術は多くの分野で求められているが、そのためには結晶成長機構を原子レベルで解明することが必要である。走査型プローブ顕微鏡は原子レベルの分解能を有し結晶成長の研究に盛んに利用されているが、その多くは成長後の表面構造の観察から成長過程を類推したものである。これは走査型プローブ顕微鏡では原子の表面拡散に影響を与えずに観察することが難しいことによる。一方、電界イオン顕微鏡(FIM)では観察の影響なしに原子の拡散を観察することが可能であり、原子一つ一つの挙動を直接観察することによる成長機構の理解に対して有力な手法である。本論文では最も基本的な成長素過程である原子の表面拡散について詳細に調べている。従来、原子が最近接サイト間よりも長い距離をジャンプする長距離のジャンプ(ロングジャンプ)はW(211)表面のようなチャンネル構造を有する面上での一次元拡散に特有のものであると考えられてきたが、本研究によりロングジャンプはW(110)表面での二次元的な拡散でも存在することが初めて明らかにされ、拡散プロセスの多様性が示された。また、膜表面の粗さ、平坦さを制御することは技術的に非常に重要な問題であるが、本論文では粗さの発現に直接関与する二次元核(アイランド)上の核生成について詳細に調べており、アイランド上での核生成がアイランド上のポテンシャルの形状に極めて敏感であることを初めて示した。論文は全7章から成っている。

第1章は序論であり、薄膜成長中に表面で起きていると考えられる表面拡散等の素過程について解説し、FIMによる原子の表面拡散挙動の直接観察がこれまでに素過程の理解に対して果たしてきた役割を総括し、本論文の目的、構成を述べている。

第2章は実験方法である。FIMの基本原理、測定手法、特に、FIMにおいて原子の拡散に影響を与えずに観察を行う手法について詳しく述べている。さらに、試料の作成法、拡散係数の精密な測定の基礎となる試料温度の測定、制御についても解説している。第3章はFIM観察の結果からロングジャンプの存在を確認するための解析手法についての説明である。拡散に含まれるロングジャンプの割合の導出は、ある一定の拡散時間あたりでの原子の変位ベクトルの統計分布を測定し、拡散のシミュレーションによりこの分布をフィッティングすることにより行われる。本章ではこの解析の理論的手法について説明している。

第4章はW(110)表面上のPd原子の表面拡散に関する結果である。185K以上の温度で $\langle 111 \rangle$ 、

<110>方向のロングジャンプの存在が確認され、この現象が W(211)表面のようなチャンネル構造での一次元拡散に特有のものではないことを発見した。ロングジャンプは最近接間のジャンプより高い温度で見られることを反映して、<110>方向のロングジャンプの活性化エネルギーは 0.6eV となり、最近接サイト間のジャンプの 0.5eV に比べるとかなり大きい。これに対して<100>方向のロングジャンプは全く観測されず、その結果として W(110)上での Pd の拡散は大きな異方性をもつことも初めて確認された。第 5 章は W(110)表面上での W 原子の自己拡散の結果である。拡散のための活性化エネルギーは 0.95eV となり Pd に比べてかなり大きい、これは W 原子と W(110)表面の結合の強さを反映している。Pd と同様にロングジャンプが確認されたが、大きな違いは<100>方向のジャンプが存在することである。しかし、いずれの系においても<110>方向へのロングジャンプの割合の方が大きい。これは原子が最近接サイトを経由してロングジャンプを行うとすると<110>方向では運動中の方向変換（角度の変化）が小さくて済むためであると推測している。

第 6 章ではアイランド表面におけるポテンシャルの形状が結晶成長に対してどのように影響するかを考察している。Pt(111)上の Pt 原子、Ir(111)上の Ir 原子の場合はエッジでのステップエッジバリア（アイランド上の原子がステップエッジを乗り越えて、一つ下の原子面へ拡散する際のエネルギー障壁）に加えて、エッジより 3 原子ほど内側に入ったところにもステップエッジに沿って第二の障壁が存在し、原子の層間移動を妨げていることが最近発見された。しかし、W(110)上の W 原子の挙動を調べたところ、エッジにはステップエッジバリアが存在するものの、その内側のポテンシャルは均一であることが確認された。さらにモンテカルロシミュレーションにより第二の障壁の存在が核上の核生成に及ぼす影響を調べた結果、この障壁は核上における原子の寿命（層間移動するまでの時間）を著しく増加させ、核生成の頻度を増加させることが明らかとなった。アイランド上での核生成は成長の結果、最終的に形成される膜表面の粗さと密接に関係しており、この知見は技術的にも有意義である。第 7 章は総括である。

以上、本研究は FIM により原子ひとつひとつの挙動を直接観察することにより W(110)表面上の二次元的な拡散においてもロングジャンプが存在することを初めて確認し、最も基本的な素過程である表面拡散の多様なジャンプ機構を明らかにした。また、膜の表面粗さに影響することから技術的にも重要なアイランド上での核生成について理論的に調べ、核生成がアイランド上のポテンシャル形状に非常に敏感であることを明らかにしたことにより、本論文は薄膜成長制御の分野において材料科学、材料工学に対する寄与はきわめて大きい。

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。