

(論文内容の要旨)

本論文は、サブナノメートル（およそ 0.2 nm）の深さ分解能で固体試料の定量性のよい非破壊組成分析を行なうことができる、高分解能ラザフォード後方散乱分光法（高分解能 RBS）を用いて、PbTe 表面構造、散乱 He イオンの荷電分布、Si(001)面上の Ge のエピタキシャル成長初期過程、Si(001)面の酸化初期過程、SiO₂/Si(001)界面の Si 基板側の格子ひずみ、HfO₂/Si(001)界面の界面層および Si 基板の格子ひずみに関して分析した結果について述べており、9 章からなっている。

第 1 章は序論であり、近年の電子デバイスの発展に従って、ナノメートルオーダーの薄膜の膜質や基板との界面を制御する必要がますます高まっている背景を簡潔に述べるとともに、そのような薄膜の組成の深さプロファイルを測定する代表的な分析法を説明している。そのひとつであるラザフォード後方散乱法（RBS）の原理を弾性散乱の運動学をもとに、散乱断面積、阻止能、エネルギーロス・ストラグリング等の物理概念を用いて説明し、その特徴を明らかにしている。またイオンチャネリングについて説明している。

第 2 章は、高分解能 RBS の実験装置について説明している章であり、高分解能 RBS の歴史を概説したのち、世界で用いられている代表的な高分解能 RBS 実験装置を紹介し、それらが達成した深さ分解能について述べている。続いて、本研究で使用した高分解能 RBS 装置に関して、その構成要素である加速器、超高真空散乱槽、磁場型のエネルギー分析器、四重極レンズ、1 次元位置検出器、計測回路等に関してそれらの特徴を詳細に説明している。

第 3 章では、PbTe(001)表面および(111)表面の構造を、高分解能 RBS により観察した結果を述べている。PbTe(001)表面は、微小なランプリングが存在する可能性を除けば、バルクと同じ構造をとっているのに対して、PbTe(111)表面は、Pb 原子層で終端されており、最表面の Pb 原子層の原子密度がバルクの(111)原子層の約 30%であることを見出した。この結果と反射高速電子線回折を用いた観察結果と合わせて、PbTe(111) 再構成表面の構造を提案している。また、この観察を通じて、高分解能 RBS によって試料表面の 1 原子層ごとの組成分析（モノレイヤーアナリシス）が可能であることが明らかに示されている。

第 4 章では、高分解能 RBS で使用される 400 keV の He⁺イオンビームを 3 種類の異なる試料に照射して、散乱された He イオンの荷電分布を測定し、その出射角依存の試料による違いを、He イオンが表面から出射する経路上におけるイオンの荷電変換過程によって説明している。また、その結果から表面に対して小さな角度で出射した He イオンを検出すれば、He イオンの荷電分布が平衡に近づくので荷電分布の違いによる分析誤差を小さくできることを示している。

第 5 章では、清浄な Si(001)表面に Ge をエピタキシャル成長させたときの、Si 原子と Ge 原子の相互拡散を高分解能 RBS で観察した結果を述べている。Ge の堆積量が 1 原子層に満たな

くても、室温で堆積後に 300°C 以上でアニールするか、もしくは 500°C で堆積させた場合においては、Ge が第 5 原子層まで存在していることを見出した。このような内部に存在している Ge の量が、多層同時成長モデルから予想される量に比べて多いことから、Si 原子と Ge 原子の相互拡散が起こっていることを明らかにしている。さらに、その相互拡散の量が最近の第一原理計算の結果とおおよそ一致していることを示している。

第 6 章では、清浄な Si(001) 表面を低圧 (10^{-7} – 10^{-4} Torr) の O_2 ガスに曝露したときの酸化初期過程を高分解能 RBS で観察した結果について述べている。基板温度が室温および 640°C において酸素の吸着量がそれぞれ 1.45 ML、2.3 ML で飽和することを明らかにするとともに、酸化が完全に層状に進行するのではなく、第 1 層の Si の酸化が完了する前に第 2 層の Si の酸化が始まることを見出した。また質量数が 16 の O_2 ガスと 18 の O_2 ガスで順に酸化することによって、第 2 層の Si が進行する過程においては、曝露している酸素が直接第 2 層の Si を酸化するだけでなく、第 1 層の Si を酸化していた酸素が一部移動して第 2 層の Si を酸化することを明らかにした。

第 7 章では、異なる基板温度 (900°C、1100°C) で厚さ約 1 nm の酸化膜を成長させた $SiO_2/Si(001)$ について、界面における Si 基板の格子ひずみの大きさを、高分解能 RBS とイオンチャネリングを組み合わせた手法によって評価した結果を述べている。1100°C で酸化膜を成長させた試料のほうが界面における Si 基板の格子ひずみが小さいことを見出し、その原因を 1000°C 以上で起こる SiO_2 の粘性流動によって、界面において酸化膜形成にともなう応力が緩和するためだと説明している。また、界面の組成遷移層の厚さが 2 ML より小さいことも明らかにしている。

第 8 章では、Si(001) 面に原子層化学気相成長法で厚さ約 3 nm の HfO_2 膜を成長させた $HfO_2/Si(001)$ 試料の界面を高分解能 RBS で評価している。界面に約 1 nm の厚さの SiO_x 層が形成されていることを明らかにしている。さらにイオンチャネリングを使った手法によって Si 基板の格子ひずみの大きさを評価した結果を述べている。 SiO_x 界面層と Si 基板の界面近傍では、Si 基板が表面垂直方向に約 1% 圧縮されていること、その圧縮ひずみは $SiO_x/Si(001)$ 界面から離れるとともに減少し、 $SiO_x/Si(001)$ 界面から 3 nm 以上深い領域では検出限界以下 (~0.1%) に達していることを明らかにしている。このひずみの原因は、 SiO_x 界面層が形成するときに界面において生じる応力である可能性を示唆している。

第 9 章はまとめの章であり、ナノメートルオーダーの薄膜を評価する技術として高分解能 RBS の有用性を主張するとともに、最近行われている高分解能 RBS の改良に関する研究を紹介し、将来の高分解能 RBS の可能性について言及している。

氏名	中嶋 薫
----	------

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、化合物半導体 PbTe の表面構造の分析を通して、高分解能ラザフォード後方散乱法により 1 原子層ごとの定量分析 (モノレイヤーアナリシス) が可能なことを示すとともに、同法の高い深さ分解能を生かして、Si (001) 表面上のエピタキシャル成長初期過程、Si (001) 表面の酸化初期過程、極薄 SiO₂ 膜および HfO₂ 膜と Si (001) の界面構造の研究を行ったものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

(1) Si (001) 表面に Ge を室温で堆積させた後に 300°C 以上でアニールした場合、または 500°C で堆積させた場合に、Ge の堆積量が 1 ML より小さい場合でも少なくとも第 5 原子層まで Ge が拡散していることを見出した。

(2) Si (001) 表面を室温および 640°C で O₂ ガスに曝露した場合、酸素の吸着量が約 1.45 ML、2.3 ML で飽和し、そのときの表面の組成はそれぞれ SiO、SiO₂ に近いことを明らかにした。また、酸化は基本的には 1 層ごとに進行するものの、室温においても第 1 層の酸化が完成する前に第 2 層の酸化が進むことを明らかにした。

(3) 900°C、1100°C で成長させた SiO₂ 薄膜と Si 基板界面に形成される格子ひずみを、高分解能 RBS とチャネリングを組み合わせた手法で評価した。その結果、1100°C で成長させた酸化膜の方が基板側に生じるひずみが小さいことを見出した。

(4) HfO₂/SiO₂/Si 構造の SiO₂/Si 界面の Si 基板側に、表面垂直方向の圧縮ひずみ (最大約 1%) が存在することを見出した。そのひずみの領域の厚さが 3 nm 程度であることを明らかにした。

以上のように本論文は、サブナノメートルの深さ分解能を有する高分解能ラザフォード後方散乱法が、極薄薄膜や表面・界面の組成分析および構造分析に有効に利用できることを示したものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平 21 年 8 月 24 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。