学位論文題名

Kinetics of Crystal Growth by Molecular-Beam Epitaxy

(分子線エピタキシー法による結晶成長の運動学)

学位論文内容の要旨

分子線エピタキシー(MBE)法は、様々な電子及び光学素子の材料となる半導体薄膜を製造する技術として広く用いられている。最近は、一原子層の精度での膜厚制御が可能になりつつあり、その技術に基づき、与えられたバンド・ギャップをもった半導体ヘテロ構造の製造が試みられている。このような高品質の薄膜の製造が可能になった背景には近年の目ざましい表面観察技術の発展がある。

様々な表面観察技術の中で、反射高速電子線回折(RHEED)法は、MBE法で成長中の結晶表面に対するその場観察技術として最もよく用いられている。RHEED法を用いた測定においては、鏡面強度振動の観察が基本的である。この振動現象は、1981年、HarrisとJoyceにより、MBE法で成長中のGaAs結晶表面に対して発見された。RHEED振動の周期は、普通、一原子(分子)層の成長する時間に等しく、また、この振動現象は結晶が一層ずつ成長していること(層成長モード)の直接的証拠を与えている。RHEED鏡面強度の振動現象は、現在、MBE法で成長中の半導体薄膜の一原子層成長制御に応用されているが、RHEED振動の提供する結晶表面に関する微視的情報は、また、強い非平衡条件下における結晶成長の運動学の研究にとっても有用である。

RHEED振動の発見以来、RHEED振動と成長機構との関係を探るため多くの実験的及び理論的研究が行われた。理論的アプローチとしては、主に、Solid-on-

-Solidモデルに基づいたモンテカルロ・シミュレーションが用いられ、解析的な取り扱いには少ない。そのような中で、最近、微斜面上のM B E成長を記述する現象論的拡散方程式が提案され、それを用いて成長モードの温度変化が解析された。しかしながら、この取り扱いでは原子同士の相互作用を二原子クラスターの生成という形でしか考慮していないので、適用範囲がごく狭い領域に限られていた。また、結晶表面を粗視化して扱っているため、成長表面に関する原子的尺度での情報が得られないという欠点もあった。一方、従来、平衡に比較的近い条件下での結晶成長の研究に用いられてきたカイネティック方程式による方法は、原子の付着、表面拡散等の結晶成長の素過程を原子的尺度でより直接的に扱うことができるという点で、現象論的アプローチよりもM B E成長の解析に適しており、上記の欠点も解消できると期待される。ただし、従来の取り扱いをM B E成長のモデルへと拡張するためには、(1) M B E成長に典型的な平衡から遠く離れた成長条件、(2) 成長中の結晶表面に生ずる非一様性の二点を考慮しなければならない。

この論文の目的は、上記の条件を考慮したカイネティック方程式を導き、その方程式に基づいてM B E成長における成長モードとR H E E D振動の関係を明らかにすることにある。この目的のために、我々は経路確率法の場所に依存した点近似をSolid-on-Solidモデルに適用し、結晶表面の非一様性を考慮したカイネティック方程式を導いた。ここで、方程式の導出に際して用いた経路確率法は非平衡系を統計力学的に扱う手法の一つで菊池により導入されたものである。ここで得られたカイネティック方程式はSolid-on-Solidモデルにおける原子の付着及び、表面拡散過程を記述し、平坦な面と微斜面の両方の面に適用することができる。我々はこの方程式を数値的に解き、結晶表面上の横方向の原子-空孔対の平均数として定義される表面の荒さの時間発展を計算した。表面の荒さはR H E E D鏡面強度に対応する物理量である。

数値計算の結果は平坦な面、微斜面の両方の面におけるGaAsのR H E E D測定結果を再現し、それに対応する成長機構についても明解な物理的説明を与えることができ

た。主な結果は次の通りである。

(A) 平坦な面

(1) 表面の荒さは、層成長モードを反映して、一原子層の成長に対応する周期で振動する。温度の上昇と共に、振動の振幅は増大し、振動の平均値は減少する。このことは温度の上昇と共に表面拡散の効果が大きくなるために、層成長モードが強まることを示している。

(2) 表面の荒さ (R H E E D) の振動の時間的減衰は、結晶表面上の相関のない領域における成長段階のずれが時間と共に増大することによりもたらされる。

(B) 微斜面

(1) 温度の上昇と共に、荒さの振動はより早く減衰するようになり、ある臨界温度以上では振動は完全に消失する。この結果はGaAs微斜面上におけるR H E E Dの測定結果を再現している。

(2) 結晶表面の形態の時間発展の数値計算結果は、温度が上昇すると成長モードがテラス上での2次元層成長モードからステップ前進成長モードへと変化することを示している。この成長モードの温度変化は、温度が上昇したときのR H E E D振動の消失に対応している。

(3) 表面の荒さ (R H E E D) の振動が完全に消失する温度は付着原子が他の原子と衝突するまでの拡散距離がテラスの幅の半分に等しくなる温度と一致する。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 朝 日 孝
副 査 教 授 徳 永 正 晴
副 査 教 授 伊 土 政 幸
副 査 助 教 授 和 田 宏

学 位 論 文 題 名

Kinetics of Crystal Growth by Molecular-Beam Epitaxy

(分子線エピタキシー法による結晶成長の運動学)

分子線エピタキシー (M B E) 法は、様々な電子及び光学素子の材料となる半導体薄膜を製造する技術として広く用いられている。1981年、HarrisとJoyceはM B E法で成長中のGaAs結晶表面に対して反射高速電子線回折 (R H E E D) による動的観測を行い、その鏡面強度が一分子層の成長時間に等しい周期で振動することを発見した。この振動現象は結晶が一層ずつ成長していること (層成長モード) の直接的証拠を与えている。R H E E D 鏡面強度の振動現象は、現在では、M B E法で成長中の半導体薄膜の一原子層成長制御に応用されている。

R H E E D 振動の発見は、また、結晶成長過程についての理論と実験の直接の比較を可能にした。しかしながら、これまでのところ理論的アプローチとしてはSolid-on-Solidモデルに基づいたモンテカルロ・シミュレーションが主に用いられ、原子レベルに基づく解析的な取り扱いは極めて少ない。結晶成長に対する解析的な扱いは現象論的拡散方程式によるものと微視的カイネティック方程式によるものとに大別されるが、特に、カイネティック方程式によるM B E成長の本格的な扱いは現在までのところまだなされていない。また、M B E成長の解析には原子的尺度での成長過程を扱うカイネティック方程式による方法が、粗視化した尺度で成長過程を扱う現象

論的拡散方程式による方法よりも優れていると期待される。

本論の目的は、(1) MBE成長に典型的な平衡から遠く離れた成長条件、(2) 成長中の結晶表面に生ずる非一様性、の二点を考慮したカインティック方程式を導き、その方程式に基づいてMBE成長における成長モードとRHEED振動の関係を明らかにすることである。カインティック方程式の導出に当たっては、経路確率法の空間的な依存性を考慮した点近似をSolid-on-Solidモデルに適用した。経路確率法は非平衡系を統計力学的に扱う手法の一つで菊池により導入されたものである。ここで得られたカインティック方程式はSolid-on-Solidモデルにおける原子の付着及び、表面拡散過程を記述し、平坦な面と微斜面の両方の面に適用することができる。また、MBE成長においては、通常、付着原子の蒸発の頻度は非常に小さいので蒸発過程は無視した。我々はこの方程式を数値的に解き、結晶表面上の横方向の原子-空孔対の平均数として定義される表面の荒さの時間発展を計算した。表面の荒さはRHEED鏡面強度に対応する物理量である。

数値計算の結果は平坦な面、微斜面の両方の面におけるGaAsのRHEED測定結果を再現し、それに対応する成長機構についても明解な物理的説明を与えることができた。主な結果は次の通りである。

(A) 平坦な面

(1) 温度が上昇すると、表面拡散の効果が大きくなるために結晶表面が平坦化し、層成長モードが強まる。

(2) 表面の荒さの振動(RHEED振動)の時間的減衰は、結晶表面上の相関のない領域における成長段階のずれが時間の経過と共に増大することによりもたらされる。

(B) 微斜面

(1) 温度が上昇すると成長モードがテラス上での2次元層成長モードからステップ前進成長モードへと変化することを、荒さの振動(RHEED振動)の消失及び、成長表面の形の時間変化の両方から示すことができる。

(3) 荒さの振動(RHEED振動)が完全に消失する臨界温度においては、他の原子と衝突するまでの付着原子の拡散距離はテラス幅の半分の長さに等しい。