

学位論文題名

Microscopic Properties of Crystals Investigated
by Ion Channeling

(イオンチャネリングによる結晶の微視的構造に関する研究)

学位論文内容の要旨

結晶の原子配列に極めて敏感で、結晶構造の原子レベルでの配置に関する情報を的確に与えるイオンチャネリング効果は、今世紀初頭にその存在が予想されながら、X線回折等の発展の陰に隠された形で省みられず、1960年代になって初めてその効果が実証された。このイオンチャネリング効果は、実空間で現象を捕らえるもので、詳細な議論は別とすれば、測定結果の解釈は極めて明瞭、簡単である等の特長のため急速に発展し、X線回折等、回折現象を用いた手法では決定できない、あるいは間接的な情報しか得られない分野において、活用されてきている。具体例の1つとして、結晶中に添加された微量異種原子の格子内位置決定があげられる。この分野でイオンチャネリング効果は独自の立場を確立してきた。しかし、置換位置が2カ所以上存在する場合、通常の方法ではその格子位置を同定することは困難である。また置換位置に存在する場合でも、母体原子と全く同様の位置に存在するのか、あるいは僅かに変位した位置に存在するのかは、その不純物の電子状態を決定する上で、極めて重要な問題である。このような結晶の微視的性質(原子レベルでの構造)を明らかにすることは、今後の固体物理学、材料科学の発展にとって、必要不可欠なものといえる。

本研究においては、このような状況を考慮して、イオンチャネリング効果の拡張された応用である非対称性効果、及び温度依存性、エネルギー依存性の測定を各種単結晶系、複合材料系に適用し、これらの方法論を確立すると共に、併せて実際に適用された系における、回折現象を用いた手法では得られない、新しい知見を得ることを目的としたものである。

本論文は、次の7章から構成されている。

第1章では、まずイオンチャネリング効果について、その発展経緯を概観した後、イオンチャネリング効果の新しい応用である非対称性効果、温度依存性、及びエネルギー依存性の意義をまとめ、全体としての研究目的を示した。

第2章では、化合物半導体と絶縁体との界面近傍の問題を議論した。まず種々の熱処理条件下での化合物半導体構成原子の絶縁体への微量拡散を、ラザフォード後方散乱、特性X線測定法により系統的に測定し、この系における異常拡散の存在を明らかにした。これより化合物半導体の界面近傍における格子乱れの存在

を推測した。次いでイオンチャネリング効果において現れる界面（表面）ピークの詳細な温度依存性の測定、解析、及び界面ピークの物理的意味の考察から、化合物半導体の界面近傍における格子乱れが、原子の通常の位置からのわずかな変位であることを明らかにした。

第3章では、特殊な構造を有する化合物半導体、混晶半導体について、それらの微視的構造を議論した。まず始めに混晶半導体 InGaAs のイオンチャネリング効果を詳細に検討し、この系の微視的構造、内因的格子乱れを明らかにした。この結果を踏まえ、超格子 InGaAs/InP の構造を評価し、歪超格子モデルとの不一致を指摘した。更に $\text{AlGaAs/InGaAs/GaAs}$ の構造を評価し、この系の臨界膜厚、及び構造上の異方性を明らかにした。

第4章では、化合物半導体中に添加された異種原子の格子内位置決定について、非対称性効果の測定を行った。その際、定量的評価のため今回初めて非対称性因子を定義し、これによる解析を行った。その結果、特に GaAs に添加された In 原子については、 In 原子の濃度に依っては、必ずしも In 原子は予想された Ga の原子位置に置換されないことを明らかにした。更に GaAs に添加された Si 原子については、 Ga 及び As の両原子位置に置換されるが、 Ga の原子位置への置換が優勢であることを明らかにした。これより、 GaAs:Si の系で問題となる、電子濃度の飽和の機構は Si-Si ペアモデルでは説明されないことを明確に示した。次いで、この GaAs:Si 系に対しては、イオンチャネリング効果の詳細な温度依存性の測定、解析から、 Si 原子の格子位置からのわずかな変位を考慮しなければならないことを明らかにした。

第5章では、第4章で用いられた非対称性効果の測定を、化合物半導体の結晶学上の極性の決定に応用した。具体例は、 CdTe と CdS 単結晶であり、これら両結晶の極性は、以前に X 線異常散乱法を用いて、世界的に権威のある研究機関において決定されていたが、今回の結果はこれを覆すものであった。これより、非対称性効果の有用性が確認され、併せて従来の X 線異常散乱法の問題点を指摘することができた。

第6章では、イオンチャネリング効果の新しい応用である温度依存性の測定を、 NiCr_2O_4 、 1T-TaS_2 の構造相転移の観測に適用し、その有効性を示した。特に構造相転移前後における揺らぎ、及びソフトフォノンとの関連について、理論的に初めて解析を行った。また高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ について、ラザフォード後方散乱、特性 X 線測定法、核反応法を用いて、各構成原子の情報を分離して測定し、超伝導遷移温度近傍の構造不安定性、特に Cu 原子と酸素原子の異常な振舞いを明らかにした。

第7章では、第2章から第6章で明らかにした結果をまとめ、全体としての結論を示した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 阿 部 寛
副 査 教 授 山 崎 初 男
副 査 教 授 武 笠 幸 一
副 査 教 授 山 谷 和 彦

学 位 論 文 題 名

Microscopic Properties of Crystals Investigated by Ion Channeling

(イオンチャネリングによる結晶の微視的構造に関する研究)

近年、半導体、特に化合物半導体を基盤とする量子効果デバイスの研究の進展にともない、従来あまり問題とされなかった結晶内の原子レベルでの格子揺らぎ、格子不整がデバイスの特性に直接は反映されるという状況となっている。

本論文は、このような状況を踏まえたうえで、高速イオンの結晶におけるイオンチャネリング効果が結晶構造における原子配置のミクロな構造を適確に捉える手法であることに注目し、従来の回折現象による測定法では解明出来なかった局所的な格子不整を物理的に明かにしたものである。

本研究の研究成果は、大別すると二つに分類出来る：

1) イオンチャネリングのエネルギースペクトラムは結晶の格子振動の平均振幅の自乗と強い相関を持ち、従ってそのスペクトルの温度変化は結晶固有の格子振動の振るまいを直接反映する。著者はこの点に注目し、化合物半導体—絶縁体界面に局在する格子乱れの物理的な実体の解明をイオンチャネリング法により実行し、これが大きな結晶における平衡状態の格子配列からの微小な格子変位であることを実験的に明かにした。

また、イオンチャネリングのエネルギースペクトラムが格子振動の振るまいを直接反映することから、 NiCrO_4 、 1T-TaS_2 結晶の構造相転移の問題に本手法を適用し、これらの結晶における格子ゆらぎ、フォノンのソフト化、及びドメインの形成を実空間で測定することに成功し、構造相転移の素過程を明かにすることに成功した。更に、本手法を高温酸化物超伝導体に適用し、超伝導転移温度近傍における各構成原子の格子振動に特異な振るまいが存在することを明かにした。

2) イオンチャネリングピークの入射角依存性が、中心対称性を欠く結晶群では角度方向に依存した非対称性を持つが、従来この非対称性を理論的に定量化する試みはな

されていなかった。著者は、この点を理論的に再検討し、その定量性の一般的な体系化を行った。その結果、化合物半導体にドーブされた不純物の原子位置と母体結晶の格子位置との関係を定量的に決定することが可能であることを始めて明かにした。又、不純物を大量に導入した場合に、不純物が置換型の原子配置から微小変位し、新たな電子状態が形成される可能性を示唆した。

これを要するに著者は、イオンチャネリング効果における格子振動との強い相関、および非対称性効果の二つの特徴に注目し、各種の結晶における局所的な格子不整、格子揺らぎの成長のミクロな構造を明かにしたもので、半導体工学、および放射線物性工学の進歩に寄与するところ大である。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。