

学位論文題名

Microscopic Analysis of Current-Induced Conversion on Si(001) Vicinal Surface by the Path Probability Method

(経路確率法による Si(001) 微斜面におけるドメイン反転現象の微視的解析)

学位論文内容の要旨

近年の結晶成長技術の発展により原子層単位での結晶成長の制御が可能となり、超格子などの自然界には存在しない新たな物質が作成されるようになってきた。しかし層単位での成長の制御には結晶成長の下地となる基板結晶表面に不純物がなく平坦であることが不可欠である。このような表面を得るための方法の一つとして、超高真空下で基板結晶を加熱し不純物等を蒸発させることにより表面の平坦性を回復させる方法(アニーリング)がある。シリコン結晶の場合、基板結晶の加熱方法として直流電流を直接基板結晶に流す方法が用いられる。この時シリコン結晶表面でドメイン反転現象と呼ばれる興味深い現象が起きる事が1988年にLatyshevらによって発見された。(001)面から[110]方向にわずかに傾けてへき開したシリコン結晶表面(Si(001)微斜面)は表面再構成により表面の周期構造が変化するために 2×1 及び 1×2 ドメインと呼ばれる2種類の表面が交互に存在し、 2×1 ドメインとその1段下側の 1×2 ドメインとは S_A と呼ばれるステップで、1段上側の 1×2 ドメインとは S_B と呼ばれるステップでそれぞれ区切られている。この結晶に[110]方向に平行に電流を流すと、2種類のドメインの安定性が電流の方向に応じて反転する、すなわち[110](ステップダウン)方向に電流を流すと 1×2 ドメインが増大し、 $[\bar{1}\bar{1}0]$ (ステップアップ)方向に流すと 2×1 ドメインが増大する。その後この現象はさらに詳細に調べられ、電流方向と優勢ドメインの増大速度の関係や2種類のステップの動きの違いなどが明らかにされた。我々はこれらの現象を「Si(001)微斜面におけるドメイン反転現象」と呼ぶ。

この現象はStoyanovによって最初に理論的説明が試みられた。StoyanovはBurton、Cabrera、Frankによる結晶成長の現象論的標準理論(BCF理論)を拡張し、(1) Si(001)再構成表面上の原子移動の異方性と(2) エレクトロマイグレーション効果(電流による表面原子の輸送効果)によって電流の方向と優勢ドメインの関係を説明した。その後Natoriらはこの研究を発展させ、原子のステップからの非対称放出効果である(3) Schwoebel効果を取り入れることによって電流方向と優勢ドメインの増大速度の関係が説明できることを示した。一方、以前我々は非平衡統計力学の系統的近似法である経路確率法(Path Probability Method、以下PPMと略記する)の点近似(分子場近似)を用いて原子の微視的運動過程からドメイン反転現象の説明を行った。以上のようにこれまでの研究によってドメイン反転現象の機構が明らかになってきた。しかし、これまで用いられて来たモデルではSi(001)微斜面の重要な性質である S_A 及び S_B ステップの安定性の違いを考慮して

いなかった。表面再構成による原子間結合の異方性から S_A 、 S_B ステップの安定性に違いが生じ、 S_B ステップの形状は S_A ステップに比べて凹凸が激くなる。そのため S_A ステップより S_B ステップからの方が原子が放出されやすく、これがドメイン反転現象に大きく寄与していると考えられる。しかし BCF 理論に基づく現象論的な取り扱いでは原子間の相互作用を無視しているためにステップの安定性の違いを取り扱うことができない。そこで本研究では、原子の微視的運動過程に基づいて結晶表面の時間発展を系統的に記述でき、原子間の相互作用を取り扱う事ができる PPM の高次近似を用いて、原子の微視的運動の立場からより詳細なドメイン反転現象の機構を調べることを目的としている。

本研究では Si(001) 微斜面を SOS(Solid-on-Solid) モデルを用いて表し、その表面上の原子の運動の基礎過程として移動及び蒸発を考え、その頻度を決定する。表面原子の移動には (1)~(3) の効果を取り入れる。さらにステップの安定性の違いは (4) 原子間結合エネルギーの異方性としてモデルに取り入れる。この原子間結合エネルギーの異方性を取り入れるためには隣接原子間の相関を考慮しなければならない。そこで今回は点近似より高次の近似であり隣接原子間の相関を考慮する対近似を用いる。結晶表面の高さを z を記述する状態変数とし、その状態変数の時間発展方程式を PPM の対近似を用いて導出し数値計算を行った。その結果、ステップ形状の違いと共にドメイン反転現象が再現された。今回の我々モデルに基づきドメイン反転現象の機構は次のように説明される。電流がステップアップ方向の時は、ステップの安定性の違いから S_B ステップからの方が S_A ステップよりも多くの原子が放出される。 S_B ステップから放出された原子は 1×2 ドメイン上では表面原子移動の異方性により電流方向に素早く移動できるため、 S_B ステップから次々と原子が放出されて S_B ステップがステップアップ方向に後退するので相対的に 2×1 ドメインが増大する。一方、電流がステップダウン方向の時は、 S_B ステップから原子が放出されても表面原子移動の異方性によりステップに沿った方向へ動きやすく、原子は S_B ステップ近傍から離れにくいのに対して、逆に S_A ステップから放出された原子は表面原子移動の異方性のおかげで 1×2 ドメイン上を素早くステップから離れていく。そのため S_A ステップから次々と原子が放出されて S_A ステップがステップアップ方向に後退するので相対的に 1×2 ドメインが増大する。また Schwoebel 効果はステップからステップアップ方向への原子の放出を抑制するので、電流がステップアップ方向の時の 2×1 ドメインの増大速度は電流がステップダウン方向の時の 1×2 ドメインの増大速度より遅くなる。さらに表面からの原子の蒸発によってそれぞれの電流方向に対するステップの動きの違いが説明される。BCF 理論に基づく現象論的な研究によって説明されたドメイン反転現象の機構は、ステップの安定性の違いを除き上述のドメイン反転現象の機構と本質的に一致している。しかし本研究ではステップの安定性を考慮したモデルに基づき、原子の微視的運動過程からこの機構を明らかにした。さらに本研究では、PPM による数値計算と並行してそれと同一モデル及び同一パラメータを用いたモンテカルロシミュレーションを行った。今回の PPM の対近似による数値計算結果はそのモンテカルロシミュレーションの結果と定量的にも一致し、この事はドメイン反転現象の解析に対して対近似が妥当である事と共に PPM が結晶表面の動的現象の解析に有効な方法であることを示している。

学位論文審査の要旨

主査	教授	和田	宏
副査	教授	徳永	正晴
副査	教授	八木	駿郎
副査	教授	伊土	政幸
副査	助教授	根本	幸児

学位論文題名

Microscopic Analysis of Current-Induced Conversion on Si(001) Vicinal Surface by the Path Probability Method

(経路確率法による Si(001) 微斜面におけるドメイン反転現象の微視的解析)

近年、原子層単位で結晶成長を制御する必要性が高まり結晶成長理論に関する研究が盛んに行われている。しかし、その多くは分子動力学や現象論によるもので、原子レベルでの結晶成長理論はいまだ未開拓の分野で、今後の発展が待たれている状況にある。

本論文は、このような現況にある原子レベルの結晶成長について、非平衡統計力学の手法である経路確率法とそれと並行してモンテカルロ・シミュレーションを用いて、Si(001) 微斜面のドメイン反転現象に関して理論的に研究し、原子レベルの結晶成長理論の構築に対する有益な知見を得ることを目的としている。

いま Si(001) 単結晶を (001) 面から [110] 方向にわずかに傾けた微斜面を作ると、表面再構成により 2×1 と 1×2 とよばれる 2 種類のテラス表面が交互に現れる。表面の清浄化過程で、Si(001) 微斜面に熱電流を微斜面が下るステップ・ダウン方向に流すときと、微斜面が上るステップ・アップ方向に流すときで、2 種類のテラス表面の安定性が逆転することが発見され、いかなる機構が働いているか理論的にも興味を持たれてきた。

著者は、系のハミルトニアンとして SOS(Solid-on-Solid) 模型と微視的素過程を与え、非平衡統計力学の手法である経路確率法を用い結晶表面の発展方程式を導き、それを数値的に積分することにより微斜面の時間発展を与えた。その際、ドメイン反転を引き起こす素過程として、(1) Si(001) 再構成表面上の原子移動の異方性、(2) 電流による表面原子の輸送効果、(3) ステップからの原子放出の非対称性を表すシュワープル効果、および、(4) 拡散原子の蒸発効果を取り入れた。これらに加えて、実験的に観察される 2 種類のステップの安定性の違いも同時に再現するため、(5) ステップを構成するダイマー間の異方性相互作用を導入した。相互作用の異方性を扱うためには最も簡単な近似として知られる分子場近似では間に合わず、原子相関を正しく取り扱うことのできる対近似で発展方程式を導いた。その発展方程式の数値積分の結果、ドメイン反転現象およびステップの安定性の違いを再現することが出来た。電流がステップ・アップ方向に流れるときは、ダイマー間

相互作用と原子移動の異方性により 1×2 テラスが不安定化して後退すること、一方、ステップ・ダウン方向に電流が流れるときは、本質的に原子移動の異方性が効いて 2×1 テラスが後退すること、さらに、後退スピードの違いが生ずるのはシュワール効果ที่สำคัญであることを明らかにした。このように、対近似の取り扱いにより、各素過程がどの現象にどのように働いているかを原子レベルで明確にした。著者は、経路確率法による解析的手法の信頼性を見るために、並行して、同一パラメーターでモンテカルロ・シミュレーションを行ったが、定量的にもほぼ同一の結果を得た。

これは要するに、著者は、熱電流下において Si(001) 微斜面で見られるドメイン反転現象について非平衡統計力学の立場から原子レベルの新知見を得たものであり、結晶成長の解析的理論へ貢献するところ大なるものがある。

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