

機関番号：13501

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20540313

研究課題名 (和文) 分子線エピタキシー成長中の反射電子回折強度振動の起源解明と成長様式の理論的研究

研究課題名 (英文) Theoretical study of the origin of RHEED intensity oscillation during growth by molecular beam epitaxy and of the growth mode

研究代表者

川村 隆明 (KAWAMURA TAKAAKI)

山梨大学・理事

研究者番号：20111776

研究成果の概要 (和文)：

分子線エピタキシー成長中の RHEED (反射電子回折) 強度振動の起源を、波動関数を用いて解明した。その結果、Si (001) 面上のホモエピタキシー成長では、基盤層と成長層とから反射してくる電子波の位相差が、GaAs (0001) 面上のホモエピタキシー成長では、入射電子に対してステップが平行な場合はステップ密度、垂直な場合は成長層の原子密度が、起源であることを解明した。この結果は今後、ナノ構造物質・デバイス等の作成制御への応用が期待される。

研究成果の概要 (英文)：

The origin of RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) intensity oscillation is studied. In case of homo-epitaxial growth on Si (001), the origin is the phase difference between the wave reflected from the substrate and that from a growing layer. In case of homo-epitaxial growth on GaAs (001), the origin is not unique and depends on the orientation of the step edges of the growing layer relative to the incident beam. When the step edges are perpendicular to the incident beam azimuth, the atomic density is the primary origin. When the step edges are parallel to the incident beam azimuth, the step density is the primary origin. The results should be quite useful as they are expected to be applied to monitoring and controlling epitaxial growth of nano-materials.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：エピタキシャル、計算物理、表面・界面物性、結晶成長、電子回折

1. 研究開始当初の背景

分子線エピタキシー (以下、MBE と呼ぶ) 成長中の RHEED 強度振動は、量子物質などを成長させるときの原子層数のモニターとして注目され、ナノテクノロジーの基礎と位置

づけられ、盛んに研究がおこなわれてきたが、その起源については4つ以上の提案があり決着がついていなかった。従って実験するときには、観測される RHEED 強度振動を研究者ごとに異なる解釈を行い、MBE による結晶成

長を制御しながら行うときの大きな障害となってきた。

これに対して、本計画の研究者は、RHEED 波動関数の計算手法を開発し、これを利用して、電子線が結晶内外のどの位置を明るく照らしながら反射して来るかを、解析することを可能にした。これはまず二次電子放出機構の解明に利用されたが、RHEED 強度振動の解釈にも利用できると考え、本研究を提案することとなった。

2. 研究の目的

RHEED 波動関数を用いて、これまで解明されなかった分子線エピタキシー成長中の RHEED 強度振動の起源を明らかにすることを本研究の目的とした。さらに動的モンテカルロ・シミュレーションによって成長過程をシミュレーションし、得られる成長中の表面形態と原子の動きを再現し、成長中の表面からの RHEED 強度変化を成長点の位置に敏感な条件で求め、原子レベルから成長機構を解明する方法を探索することもあわせて研究目的とした。

3. 研究の方法

成長中の結晶表面の形態学については、本研究者がこれまでに開発してきた結晶成長のモンテ・カルロ法を用いて行いた。この方法は成長中の結晶表面形態を再現するのに簡便な方法であり、これまでシリコン、ゲルマニウム、ガリウムヒ素などの表面について、実験結果を再現することができている方法である。

RHEED 波動関数の計算法は本研究者らが開発した方法で、結晶およびその表面上のどこに電子が局在するか、どこを電子が強く照らし、どこは弱いかなどを明らかにする方法である。

本研究では、まずスーパーセルと呼ばれる長周期の結晶表面に、モンテ・カルロ法などで得られる、成長中の典型的な表面形態を想定し、その表面からの RHEED 強度を計算し、実験結果と最も合うような成長過程の表面形態を求める。次に、その表面形態について、RHEED 強度振動を観測するのに最も適した条件を見出す。最後に、この最適条件において、RHEED 波動関数を計算し、この条件における RHEED 強度振動の起源を明らかにする方法を採用した。

4. 研究成果

(1) Si (001) 面上のホモエピタキシー成長

基盤層と第 1 成長層とからの反射電子の位相の差が、RHEED 強度振動の起源である

ことを明らかにした。入射エネルギー 30keV で Si (001) 面に入射させたときの鏡面反射強度曲線（ロッキングカーブ）を図 1 に示す。縦軸は鏡面反射強度、横軸は視射角である。

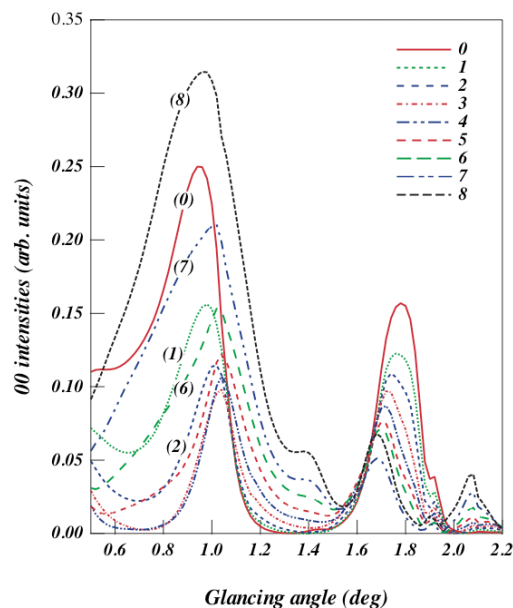


図 1. 原子列の増加に伴うロッキングカーブの変化

赤色の実線 (0) は平坦な表面からの強度、緑の点線 (1) は原子列が電子の入射方位に沿って一列できた表面からの強度で、以下 (2)、(3)、の順に原子列が括弧内の数だけ形成された表面からの反射強度である。1° 付近の反射強度に注目すると、原子列が 1、2 と増えていくと強度は減少し、4 列 (青の 2 点鎖線) あたりで最小となる。さらに 6、7 と原子列数が増加すると、反射強度は上昇し、原子列が 8 (黒の点線) になり平坦になると、原子列が 0 で平坦な場合に比べて、逆に強度は大きくなる。同じ平坦面でも 0 と 8 とで反射強度が異なるのは、表面付近での原子配列が異なっているためである。図 1 から鏡面反射強度が、原子列の変化とともに、系統的に変化していることがわかり、これが層状成長する表面で見られる RHEED 強度振動に対応するものと考えられる。

図 1 の RHEED 強度振動の起源を、RHEED 波動関数を用いて解析した。入射エネルギー 30keV、視射角 0.98° のときの Si (001) 表面付近での電子の振る舞いを示す量として RHEED 波動関数の絶対値の二乗の強度分布を、図 2 に示した。

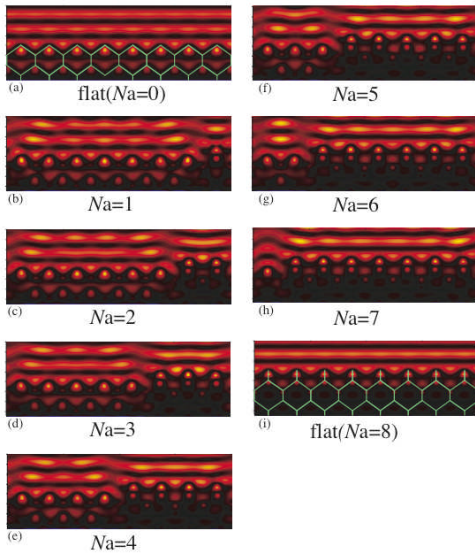


図2. 原子列数の変化に伴う、RHEED 強度分布の変化。左上から下へ、さらに右上から下へと、第1成長層の原子列数 N_a が増加している。

明るい（黄色）のコントラストは電子の強度が強いことを示している。また左上と右下の図は $N_a=0$ と 8 に対応する平坦面からの強度分布で、図中の六角形状の緑色の線は原子結合を表していて、線の端が Si の原子位置に対応している。図 2 (a) と (b) の電子強度を比べると、(b) では右端に一層高い原子列が形成されていて、この部分の上側の電子強度の明るい部分は左側の他の部分に比べ、高さがずれていることがわかる。この位相のずれは $2\pi/3$ である。位相のずれは、(e) の $N_a=4$ の場合、よりはっきり見ることができる。位相のずれは N_a の値によらず、ずれた波の割合が N_a とともに変化する。この位相のずれた波の割合の変化によって、成長開始とともに RHEED 強度が減少し、また $N_a=4$ 以上で逆に増加していく原因であることがわかる。すなわち、層状成長をする Si (001) 面上での成長では、1 層または 2 層を周期とする振動が、電子線の入射角が 1° 付近で得られ、その振動の原因は一層違う表面からの電子の散乱に位相差が存在することである。逆にいえば、滑らかな RHEED 強度振動は 1 層または 2 層の成長に対応することが明らかになった。

この位相差が RHEED 強度振動の起源であるという説は、1 回散乱理論でに基づき提唱され、いわゆるオフ・ブラッグ条件といわれるものがある。本研究の位相差は多重散乱理論の結果であり、ブラッグ条件でみられるもので、本質的に異なるものである。

(2) GaAs (0001) 面上のホモエピタキシー成長

この場合は入射電子と表面のステップとの相対位置により、RHEED 強度振動の起源が異なることを明らかにした。

図 3 に電子のエネルギーが 15keV で、入射電子とステップが垂直な場合の、原子列変化に対する鏡面反射強度変化を示す。(a) は平坦な表面で、左側の図で (b) から (e) は、16 倍周期の中に 1 つの島があり、ステップ密度一定のときに、原子列が 2、4、8、10、12 と増加していった場合の強度変化を示している。反射強度は原子の密度変化とともに系統的に変化し、RHEED 強度振動と対応する。

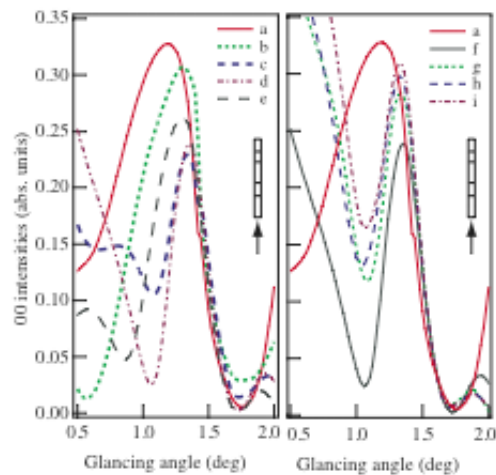


図3. GaAs (001) からの RHEED ロッキングカーブ。入射電子と表面ステップが垂直な場合。左側：原子密度依存性。右側：ステップ密度依存性。

一方、右側は原子の密度を 0.5 とし、島の数を変えて、ステップ密度を (f) 0.125、(g) 0.25、(h) 0.375、(i) 0.5 としたときの反射強度を示している。 1° 付近の強度はあまり大きくは変化していないが、ステップ密度とともにわずかながら増加している。

つぎに図 4 に入射電子とステップが平行な場合の、原子列変化に対する鏡面反射強度変化を示す。左側はステップ密度を 0.125 (一定) として原子の密度を (b) 0.25、(c) 0.5、(d) 0.75 にしたときの反射強度のロッキングカーブである。原子の密度変化に伴う反射強度変化は小さく、とくに 1° 付近ではごくわずかであることがわかる。右側は、原子の密度を 0.5 に固定して、ステップ密度を (e) 0.125、(f) 0.25、(g) 0.375、(h) 0.5 としたときの反射強度のロッキングカーブの変化を示す。図 3 とは異なり、原子の密度に対しては変化が小さく、ステップ密度に対し

て変化が大きいことがわかる。図3および4から、RHEED強度振動の起源は、1つではなく、電子の入射方位とステップの相対的な位置によって異なり、2つあることがわかる。

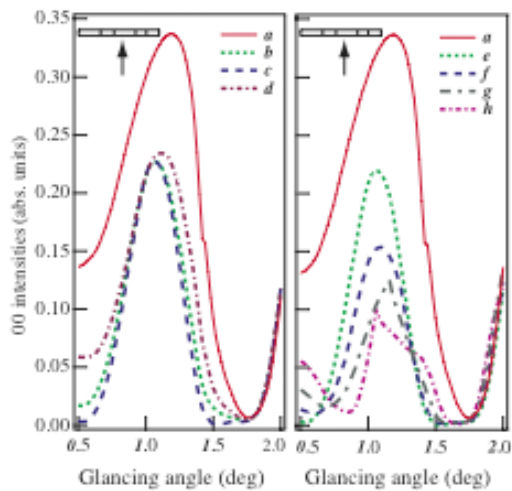


図4. GaAs(001)からのRHEEDロックンングカーブ。入射電子と表面ステップが平行な場合。左側：原子密度依存性。右側：ステップ密度依存性。

この方位依存性の原因を明らかにするため、RHEED波動関数による解析結果を示す。図5は入射電子とステップが垂直な場合の電子密度分布である。

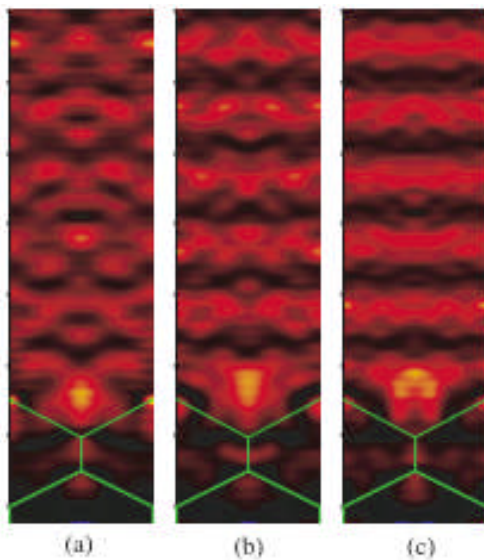
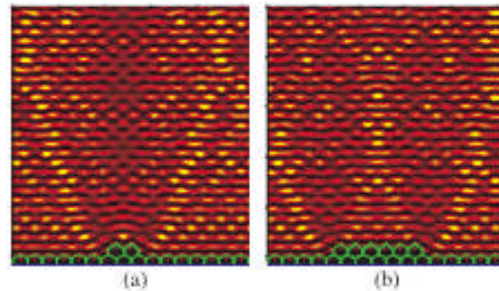


図5. 電子強度分布のステップ密度依存性。ステップ密度：(a) 0.125、(b) 0.25、(c) 0.5。

ステップ密度の増加とともに赤い色の帯状の部分がまとまって来ていることがわかる。すなわちステップなどで反射された電子波の位相が徐々に揃ってきていることを示している。これは図3右側で見

られた、ステップ密度の増加とともに、わずかながら反射強度が増加する理由になっている。

図6. 入射電子とステップが垂直な場合の



RHEED強度分布。ステップ端から電子が反射されていることが示されている。

一方、入射電子とステップが垂直な場合にRHEED波動関数から求めた電子強度分布は、図6のようになる。左側(a)は原子の密度が0.156の場合、右側(b)は0.406の場合である。強度分布をみると黄色く表示された強度の強い部分はステップの端から斜め上側に現れており、ステップからの反射が大きいことを示している。このステップからの反射のために、鏡面反射強度が減少することがRHEED強度変化の原因である。ステップの数の増加とともに、強度は減少するが、1つの島の中に含まれる原子の数(原子の密度)にはあまり依存しない理由が、理解できる。

以上で得られたことは、これまで議論があり決着がつかなかった、強度振動の起源がステップ密度であるか、原子密度であるかという議論に決着をつけるものである。

上で示したように、RHEED強度振動の起源を、RHEED波動関数を利用して解明するという本研究の目的は、条件は限られているが、Si(001)とGaAs(001)面上のホモエピタキシー成長については、十分に達成された。GaAs(001)面上での結果は、かなり予想外のものであったが、RHEEDの幾何学的特徴を考えれば、十分納得のいくものである。この種の解析は、系や入射電子の条件を変えると変わってくることも考えられる。ナノ物質の作製が次世代の新物質やデバイスに欠かせないことを考えると、さらに発展的な研究を行うことは有益なことと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

- ① T. Kawamura and P.A. Maksym:
Origin of RHEED intensity oscillation
during homoepitaxial growth on GaAs
(001), Journal of Physical Society of
Japan, 80 (2011) 063602. (査読有)
- ② T. Kawamura and P.A. Maksym:
Origin of RHEED Intensity Oscillation
During Growth Studied by Using Wave
Functions, Journal of Physical Society
of Japan, 78 , (2009) 073601. (査読有)
- ③ T. Kawamura and P.A. Maksym:
RHEED wave function and its
applications, Surface Science Report,
64 (2009) 122-137. (査読有)

[学会発表] (計8件)

- ① 川村隆明 : GaAs(001)面上 MBE 成長モフ
ォロジーと RHEED 強度振動、日本物理学会
2010 年秋季大会、2010 年 9 月 23 日、大阪
府立大学、堺市
- ② T. Kawamura: Origin of RHEED intensity
oscillation during growth on GaAs(001),
18th International Vacuum Congress
(IVC18), 2010, August 24, Beijing, China.
- ③ 川村隆明 : GaAs(001)ホモエピタキシャル
成長中の RHEED 強度振動の起源 II、日本
物理学会第 65 回年次大会、2010 年 3 月 22
日、岡山大学、岡山市
- ④ 川村隆明 : GaAs(001)ホモエピタキシャル
成長中の RHEED 強度振動の起源、日本物
理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 27 日、
熊本大学、熊本市
- ⑤ T. Kawamura and P.A. Maksym:
Origin of RHEED Intensity Oscillation
during Growth on Si(001) Surface,
ECOSS(European Conference on Surface
Science)-26, 2009, September 2, Parma,
Italy.
- ⑥ 川村隆明 : 結晶表面付近での RHEED 電子
の振る舞い、日本顕微鏡学会、2009 年 5 月
27 日、仙台国際センター、仙台市
(招待講演)
- ⑦ T. Kawamura: RHEED wave function and
its application to surface structure
analysis、VASSCAA(Vacuum and Surface
Sciences Conference of Asia and
Australia)-4, 2008, October 30, Matsue,
Shimane, Japan.
- ⑧ 川村隆明 : ステップ付近での RHEED 電子
強度分布、日本物理学会 2008 年秋季大会、
2008 年 9 月 23 日、岩手大学、盛岡市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川村 隆明 (KAWAMURA TAKAAKI)
山梨大学・理事

- 研究者番号 : 20111776
- (2) 研究分担者
該当なし
- (3) 連携研究者
該当なし