

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 村 松 伸 哉

本論文は "Effects of Hydrogen Coverage on Silicon Thin Film Growth Studied by Molecular Dynamics Simulation" (和訳: シリコン薄膜成長における基板表面水素被覆の効果 — 分子動力学法による解析) と題し、比較的低温でのシリコン薄膜成長においてシリコン基板表面の水素被覆が分子レベルで及ぼす影響を、分子動力学シミュレーションを多数回繰り返すことによって、定性的、定量的に評価することを目的としたもので、全7章から構成されている。

第1章では、シリコン薄膜成長における表面の水素被覆の効果に関して提案されている既往のモデルの紹介を含めて、本論文の背景、目的、方針について述べている。

第2章では、本研究を遂行するために新たに開発した多重時間刻み分子動力学法について理論及び数値実験による検証によって説明している。従来の分子動力学法では水素とシリコンという質量の異なる原子を含む系のシミュレーションにおいて、水素原子の高速な動きに全体の時間刻みの大きさが制限されて計算速度の低下を招くため、このアルゴリズムは、その制限を緩和するために開発したものである。そして従来のアルゴリズムとの性能比較を行い、ある計算精度を得るために必要な計算時間が、このアルゴリズムを用いることにより短縮されることを明らかにしている。

第3章では、H ラジカルを水素被覆 Si(001) 面に降らせるシミュレーションを行い、観測された各表面素反応について論じている。その際、水素被覆度の異なる基板のモデルとして、0.5 原子層 (ML) から 2.5ML の水素被覆度に対応する5種類の表面構造を用い、それらの局所的な水素被覆変化に対する結果の違いを解析している。水素原子の吸着および引き抜きにより様々な表面構造が生成したが、その中でダングリングボンドを持つ 0.5ML 構造や、弱い Si-H 結合を持つ 1.5ML 構造は高い吸着確率を示していた。このことから、これらの表面構造が水素被覆の増減に伴って生成されることで、基板の反応性が高まっていると結論づけている。また水素被覆の効果として、基板の Si-Si 結合を切れやすくする効果、およびラジカルの内部吸着を阻害する効果もあることを明らかにしている。

第4章では、 SiH_3 ラジカルを水素被覆 $\text{Si}(001)$ 面に降らせるシミュレーションを行い、観測された拡散、反応などの各表面現象について論じている。主として、反射、吸着、水素引き抜き反応が観測されたが、それぞれの反応確率を表面構造の種類ごとに求めた結果から、優先的に起こる反応の種類は表面構造ごとに異なること、ダングリングボンドが表面反応確率を非常に高めることを明らかにしている。吸着反応は、 SiH_3 ラジカル自身の分解をしばしば伴っており、特にダングリングボンドを有するような構造に対しては、水素原子を表面に残し SiH_2 が脱離する水素吸着反応を起こしうるとの知見を示している。また表面拡散について、水素被覆が SiH_3 ラジカルの表面拡散を促進する効果を持つことを示している。

第5章では、密度汎関数法によって前章までに議論した各表面構造のエネルギー計算を行っている。0.5ML, 1.5ML, 2.5ML 構造が、高い反応性を有しながらも準安定に存在する構造であることを示し、さらに 1.5ML 構造と 2.0ML 構造が隣り合っている場合には、相互作用を起こしてさらに安定化するとの結果を示している。また SiH_3 ラジカルによる水素吸着反応が、0.5ML, 1.5ML 構造に対しては発熱反応であることを明らかにしている。以上の結果は、前章までのシミュレーション結果と一致する結果であり、これらを示すことで分子動力学シミュレーション結果の妥当性を示している。

第6章では、前章までで得られた結果を元に、実際の成長表面で起こっていると考えられる現象について考察を行っている。そして従来のモデルとの比較を交えつつ、薄膜成長プロセスの原料ガスへの水素添加による表面水素被覆の変化、およびその変化が後の表面現象に及ぼす影響について論じている。

第7章では、本論文を総括し、そこから導き出される今後の展望を示している。

以上要するに、本論文は、分子動力学シミュレーションというアプローチにより、シリコン薄膜成長時に基板表面で起きている現象のうち水素被覆が関わる現象、およびその反応機構に関する知見を与えると共に、表面水素被覆がそれぞれの現象に及ぼす影響を定量的に評価したものであり、化学システム工学及び材料プロセス工学の発展に寄与するところ大である。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。