

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 原 祥太郎

研究題目 「構造緩和アモルファスシリコンの原子モデリング及び  
表面・界面特性評価：分子動力学アプローチ」

半導体分野などで用いられる薄膜の真性応力や弾性定数などのマクロな材料物性値は、界面や表面のミクロな構造・物性に強く依存することがわかっている。界面・表面は基本的に電子構造のレベルまで立ち返った考察が必要であり、薄膜の物性を明らかにするためには、第一原理計算（密度汎関数法）や分子動力学、有限要素法などを組み合わせたマルチスケール解析を行う必要がある。

本論文は、分子動力学と第一原理計算を用いて、構造緩和したアモルファスシリコン表面、あるいは構造緩和した結晶／アモルファスシリコン界面の微視的構造評価と、それら表面・界面の力学的特性評価を行う手法を提案し、実験では得られていない表面応力や界面応力の予測値の算出を行ったものである。アモルファスシリコンは半導体分野で最も良く用いられている材料であり、本論文の基礎検討が及ぼす貢献は大きい。また、本手法はシリコンと同様の共有結合性材料（GaAs, GeN, SiO<sub>2</sub>）に拡張可能であるため、発展性が高いと考えられる。

第 1 章は序論であり、表面・界面の微視的な構造・力学的特性を求める意義について述べられ、過去の表面・界面の微視的構造の分子レベルの研究例が紹介されている。本研究で提案する、これらの研究では実現されなかったアモルファスの構造緩和に着目した微視的モデリングの重要性について述べられている。

第 2 章では、分子動力学法の基本アルゴリズムを整理し、つづいて、ラグランジュ座標系を用いた表面／界面物性値(表面／界面エネルギー・表面／界面応力・表面／界面弾性定数)の定義を述べ、原子系での評価式が導出されている。

第 3 章では、分子動力学によりアモルファスシリコンの構造緩和を高速化し、つづいて分子動力学結果を第一原理計算へと受け渡すことでアモルファスシリコンの安定構造を得る手法について述べられている。また、構造緩和の効果を評価するためには、微視的構造パラメータによる微視的構造の詳細評価が有効であることが提案されている。上記手法により得られたバルク構造は、構造パラメータが実験結果と一致し、配位数欠陥が 3%以下の理想構造に近い構造となることを示した。さらに安定構造に存在した配位数欠陥の電子構造を明らかにした。ここで行った安定構造の議論は、過去の構造緩和の影響を考慮しない第一原理・分子動力学計算結果の不備を指摘するものであり、計算結果と実験結果の比較においてこれまでの議論を整理することができた。

第 4 章では、3 章で提案した手法を表面へと拡張することによって、構造緩和した a-Si 表面の微視的安定構造を解明し、表面エネルギー・表面応力の定量値を初めて評価した。構造緩和した a-Si 表面では主として、sp<sup>2</sup>-like な軌道のバックボンドと、p<sup>3</sup>-like な軌道のバックボンドをもつ 3 配位原子が分布することを示した。これらは、バルク構造中の 3 配位原

子の sp<sup>3</sup>-like な結合とは異なることを示し、アモルファスシリコンの表面の電子構造について新しい知見を与えた。

第 5 章では、構造緩和 c-Si/a-Si 界面の力学的特性を評価するため、3 章で提案した手法を界面へと拡張した。界面境界同定において新たに構造パラメータをベースとした手法を提案し、従来曖昧であった界面境界同定の問題を解決した。これは構造緩和界面の界面物性値評価手法を新たに提案である。提案手法の適用の結果、実験値と一致する界面エネルギーの値が得られ、かつ実験では評価困難な界面応力の値を初めて評価した。界面エネルギーは実験値と一致し、その面方位依存性は小さいことを示した。つづいて、分子動力学で得られた物性値の妥当性を検証することを目的に、実験を忠実に模擬した均一核生成シミュレーションを初めて分子動力学の枠組み内で実現した。そして、構造パラメータを使った臨界核サイズの定量的評価手法を提案し、計算結果が実験とよく一致することを示した。

第 6 章では、本論文により得られた結論と、その意義を述べ、今後のマルチスケール解析へのさらなる発展についても展望を述べている。

以上のように、本研究では、半導体材料で最も使われているアモルファスシリコンの表面・界面の構造・力学的特性解明に対して、大きな指針を与えたものである。本手法は、アモルファスシリコンに限らず、同様な共有結合性材料に応用可能であり、幅広く展開できるものと考えられる。

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。