



Title	薄膜成長過程の原子論的モデリングに関する研究
Author(s)	山本, 昌裕
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/48722">https://hdl.handle.net/11094/48722</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	山本 昌裕
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 22016 号
学位授与年月日	平成 20 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科機械工学専攻
学位論文名	薄膜成長過程の原子論的モデリングに関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 澁谷 陽二 (副査) 教授 田中 敏嗣 教授 高谷 裕浩 教授 尾方 成信

### 論文内容の要旨

スパッタリング成膜におけるモルフォロジーの形成メカニズムに関する理解を深めるため、薄膜成長過程に関する原子論的モデリングを行なった。面心立方格子 (fcc) 金属であるアルミニウム (Al)、銅 (Cu)、ニッケル (Ni) の (111) 面上におけるイベントに関して、fcc と最密六方格子 (hcp) の 2 種類のサイトが存在することを考慮して、NEB 法と振動解析により活性化エネルギーと試行頻度を求めた。その結果、3 種類の材料はそれぞれ特徴的な拡散レートの傾向を持っており、これらが薄膜成長過程における表面モルフォロジーに影響する可能性を示した。そして、Kinetic Monte Carlo (KMC) 法の解析により、Al に関しては表面モルフォロジーが成膜レートと温度のバランスにより決定されることを明らかにした。また、核成長の極初期段階において、hcp の島は速やかに fcc サイトに移動することにより全て fcc の島になることがわかり、このような非常にシンプルな素過程がマクロなモルフォロジー形成のきっかけになっていることを明らかにした。

つぎに、Molecular Dynamics (MD) 法を用いて、膜表面にスパッタ粒子が到来するときに引き起こされる表面イベントを評価、分類した結果、入射粒子の条件によって非常に大きな違いが生じることがわかった。それにより、従来の KMC で行われている deposition を単純なモデリングで表現することが困難であることを明らかにした。そこで、スパッタリング成膜の薄膜成長過程をより正確に取り扱うことのできる KMC と MD を組み合わせたハイブリッド法を提案し、Al、Cu 成膜における表面モルフォロジーに対する素過程の寄与を明らかにした。加えて、従来の KMC による結果と比較することにより、deposition の部分のモデリングを改良した有効性を明らかにし、プロセスパラメータによって変動する deposition の様々な条件の変化にも対応できる手法であることを示した。以上のことにより、KMC パラメータによって特徴づけられる長期間で穏やかな拡散素過程と、短期間でダイナミックな deposition の効果が、成膜速度と基板温度のバランスの中でマクロなモルフォロジーを決定することを示した。

最後に、格子定数の異なるヘテロ界面が KMC パラメータに及ぼす影響を調べ、格子不整合のもたらすポテンシャルエネルギー曲面の変化が活性化エネルギーや試行頻度に影響を及ぼすことを示した。また、活性化エネルギーの変化は成長層が 3 層程度成長するまでは変化をし、それ以降はほとんど変化しないことを示すと同時に、拡散レートに対する影響は活性化エネルギーの変化が支配的であることを示した。さらに、それを踏まえた Cu/Ni ヘテロ界面における KMC パラメータを決定し、そのパラメータを用いて Cu/Ni ヘテロエピタキシャル成長における薄膜成長過程を原子論的モデリングにより明らかにした。

## 論文審査の結果の要旨

本論文では、スパッタリング成膜におけるモルフォロジーの形成メカニズムに関する理解を深めるため、薄膜成長過程に関する原子論的モデリングを行なっている。面心立方格子 (fcc) 金属であるアルミニウム (Al)、銅 (Cu)、ニッケル (Ni) の (111) 面上におけるイベントに関して、fcc と最密六方格子 (hcp) の2種類のサイトが存在することを考慮して、NEB 法と振動解析により活性化エネルギーと試行頻度を求めている。その結果、3種類の材料はそれぞれ特徴的な拡散レートの傾向を持っており、これらが薄膜成長過程における表面モルフォロジーに影響する可能性を示している。そして、Kinetic Monte Carlo (KMC) 法の解析により、Al に関しては表面モルフォロジーが成膜レートと温度のバランスにより決定されることを明らかにしている。また、核成長の極初期段階において、hcp の島は速やかに fcc サイトに移動することにより全て fcc の島になることがわかり、このような非常にシンプルな素過程がマクロなモルフォロジー形成のきっかけになっていることを明らかにしている。

つぎに、Molecular Dynamics (MD) 法を用いて、膜表面にスパッタ粒子が到来するときに引き起こされる表面イベントを評価、分類した結果、入射粒子の条件によって非常に大きな違いの生じることを示している。それにより、従来の KMC で行われている deposition を単純なモデリングで表現することが困難であることを明らかにしている。そこで、スパッタリング成膜の薄膜成長過程をより正確に取り扱えるように、KMC と MD を組み合わせたハイブリッド法を新たに提案している。従来の KMC による結果と比較することにより、deposition の部分のモデリングを改良した有効性を明らかにし、プロセスパラメータによって変動する deposition の様々な条件の変化にも対応できる手法であることを示している。

最後に、格子定数の異なるヘテロ界面が KMC パラメータに及ぼす影響を調べ、格子不整合のもたらすポテンシャルエネルギー曲面の変化が活性化エネルギーや試行頻度に影響を及ぼすことを示している。また、活性化エネルギーは成長層が2層程度成長するまでは変化を示し、それ以降はほとんど変化しないことを示すとともに、拡散レートに対する影響については活性化エネルギーの変化が支配的であることを明らかにしている。さらに、それを踏まえた Cu/Ni ヘテロ界面における KMC パラメータを決定し、そのパラメータを用いて Cu/Ni ヘテロエピタキシャル成長における薄膜成長過程を原子論的モデリングにより明らかにしている。

以上のように、本論文は薄膜成長過程における素過程のメカニズムについて、KMC や MD といった原子論的解析手法に基づくモデリングを提案し、薄膜形成に与える因子の影響について解明したもので、その学術的価値は高い。よって本論文は、博士論文として価値あるものと認める。