

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 37-147018 高本 聡

研究題目： Si 及び SiC の酸化のダイナミクスを再現する電荷移動型原子間ポテンシャルの開発と酸化メカニズムの解明

本論文では、電荷移動型分子動力学ポテンシャルの開発を通し、Si および SiC の熱酸化過程の原子スケールでの解明が行われた。本論文は 3 つの研究を含んでいる。それぞれ Si の熱酸化、SiC 上のグラフェン成長、SiC の熱酸化を対象としている。6 章の SiC の熱酸化に対して、4 章の Si の熱酸化は電荷移動型ポテンシャルによる酸化および酸化膜の再現、5 章の SiC 上のグラフェン成長は SiC 結晶および C クラスターの再現という点でそれぞれ関係を持つテーマとなっている。

第 1 章では、Si 及び SiC の酸化に関して直面している問題を解説し、現在行われている原子論的なアプローチとその問題点について述べられている。現在 SiC のデバイス作成においては SiC/SiO₂ 界面の質に問題があり、また界面近傍では Si の熱酸化とは異なる現象が発生していることが指摘されている。また扱うスケールの大きさから、古典分子動力学法の適用が望まれていることが述べられている。

第 2 章では、本論文で使われる分子動力学法とその周辺の理論について述べられている。

第 3 章では、熱酸化を分子動力学法で扱う際の課題を挙げ、それらを解決するための手法が述べられている。酸化による反応性の変化については電荷移動型分子動力学法によりモデル化が行われた。また、ロバスト性獲得のため、MD を使った構造のサンプリングと第一原理計算を組み合わせることで幅広い位相空間をフィッティングする手法が提案された。また、フィッティングの際の手順についても示されている。勾配に基づく最適化計算と遺伝的アルゴリズムを組み合わせていること、パラメータ間の関係性について考察しフィッティングを行う順序についても述べられている。

第 4 章では、Si の酸化過程の解明を行っている。Si-O 系の原子間ポテンシャルを開発し、SiO₂ アモルファス構造や O₂ 分子の拡散、解離などのバリアについて先行研究と一致していることを確認している。また、表面からの酸素の供給による Si 酸化シミュレーションが行われた。界面構造について、実験的に存在するとされていた界面遷移層や、高密度な酸化膜の形成を再現することに成功した。また、界面に応力が蓄積していることを確認し、界面からの Si の放出などが起きていることを確認した。

第 5 章では Si-C 系の原子間ポテンシャルを開発し、SiC 表面のグラフェン成長シミュレーションへの適用を行っている。SiC 酸化界面で見られる C の鎖状構造など多様な C クラスター構造を再現するため、従来の Tersoff 型共有結合ポテンシャルをもとに新しい関数形を提案している。この関数形をもとに SiC 表面の MD を行い、SiC 表面にグラフェンが成長し

ていく過程を再現した。従来実験的に提案されていたグラフェン成長のモードを再現し、また最終的にグラフェンが全体を覆うまでの大規模なシミュレーションを実現した。

第6章では SiC の酸化過程の解明を行っている。SiC の熱酸化では、実験より面方位により酸化速度に顕著な差が出ることを示されている。また酸化膜の密度が低く不均一であるとの報告があり、C クラスターの存在が示唆されているものの実験的には結論が得られていない。それをもとに本章では SiC 熱酸化の面方位依存性の解明および酸化膜形成に C クラスターが及ぼす影響の解明が目的として設定されている。Si-C-O 系の原子間ポテンシャル作成では、第一原理計算による界面構造がフィッティングに用いられている。SiC の酸化シミュレーションを行い、Si 面と C 面のいずれの場合も界面で酸化膜が成長していく様子を再現し、Si 面と C 面で酸化速度および酸化の活性化エネルギーが異なることを確認した。またこれに関連して界面 Si のネットワーク構造に着目し、面方位により SiC/SiO₂ 界面構造に差が出ることを再現している。一方で C クラスターについては、酸化の進行により界面に作られ酸化膜中に取り残される様子を確認している。この C クラスターについてはさらなる酸化により取り除かれ、結果的に疎な構造の酸化膜が作成される様子が再現されている。これについて、SiC では Si の酸化とは異なり疎な酸化膜が作られるとする実験結果との対応がとられている。

第7章では結論と研究の展望を述べている。

以上の研究により、Si および SiC の熱酸化を対象とした電荷移動型原子間ポテンシャルの開発および原子スケールでの解析が行われ、これらの学術的知見が得られた。

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。