

研究種目：若手研究 (B)  
 研究期間：2007 ~ 2008  
 課題番号：19760067  
 研究課題名 (和文) ひずみ誘起量子ドットの形成メカニズム解明と成長シミュレーション  
 研究課題名 (英文) Elucidation of Formation Mechanism and Growth Simulation of Strain-induced Quantum Dot  
 研究代表者  
 松中 大介 (MATSUNAKA DAISUKE)  
 大阪大学・大学院工学研究科・助教  
 研究者番号：60403151

## 研究成果の概要：

表面や界面におけるひずみは表面構造や界面強度を決定する重要な要素である。原子スケールの構造ではひずみの影響はより重要になる。本研究では、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を援用し、ひずみ誘起量子ドットの形成・成長を制御するキーファクターを探索するためにヘテロエピタキシャル成長について微視的な視点から解析を行った。Ge/Si(001)ヘテロエピタキシャル成長において、Ge吸着原子が感じるポテンシャルエネルギー表面を算出し、濡れ層の堆積に伴って、吸着サイトは変化しないものの、Ge吸着原子の表面拡散は変化することを示した。また、表面上での様々な素過程に対しての活性化エネルギー障壁を評価し、濡れ層の増加によってEnrlich-Schwoebel障壁は増加し、上段テラスと下段テラスとの間の吸着原子の移動は抑制されることを明らかにした。動的モンテカルロ法による結晶成長シミュレーションを用いて、基板のひずみによって核形成速度や形成された島の形状が異なることを示した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	600,000	0	600,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	1,100,000	150,000	1,250,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・材料力学

キーワード：材料設計・プロセス・物性・評価

## 1. 研究開始当初の背景

表面や界面において、ひずみは例外なく存在しており、表面構造や界面強度を決定する重要な要素である。近年の結晶成長技術によって薄膜や超格子の作製が可能となっているが、このような原子スケールの構造ではひずみの影響はより重要になる。Ge/Si(001)へ

テロエピタキシャル成長においては、基板と薄膜基材の格子不整合から生じるひずみによって薄膜上にナノ構造が自発的に形成される。このようなひずみ誘起による量子ドットはボトムアップ型のナノテクノロジーとして注目されており、その実用化のためには、形成メカニズムを解明し、大きさ、形状、分

布を制御する成長条件を見出すことが必要不可欠である。

## 2. 研究の目的

本研究では、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を援用し、ひずみ誘起量子ドットの形成メカニズムを微視的な視点から解明し、ヘテロエピタキシャル成長を制御するキープクターを探索する。

## 3. 研究の方法

Ge 吸着原子が表面上で感じるポテンシャル関数を第一原理計算により算出する。表面に平行な座標を  $0.24\text{\AA}$  のメッシュに区切り、各メッシュ点での Ge 吸着原子の吸着エネルギーを計算して補間する。各濡れ層膜厚に対して得られたポテンシャルエネルギー表面から吸着原子の表面ダイナミクスの膜厚依存性を評価する。さらに、ダイマー形成やダイマーの拡散などの他の素過程についても安定構造のエネルギー・活性化エネルギー障壁を第一原理計算から評価する。表面上の複数の原子が関与する素過程においてはポテンシャル表面の自由度は多次元であるため nudged elastic band 法を援用して最小エネルギー経路を決定する。

実際の結晶成長速度に匹敵する時間スケールで原子レベルでのシミュレーションが可能である動的モンテカルロ法を用いて、エピタキシャル成長のシミュレーションを行う。各素過程の活性化エネルギー障壁や試行頻度におけるひずみ依存性が結晶成長に与える影響を調べる。

異材界面の密着特性について第一原理計算を用いて解析する。界面結合と界面安定性における格子不整合によるひずみの効果を調べる。

## 4. 研究成果

(1) 「第一原理計算による吸着原子のポテンシャルエネルギー表面 (PES)」

Ge/Si(001)ヘテロエピタキシャル成長において Ge 吸着原子が感じるポテンシャルエネルギー表面 (PES) を密度汎関数理論に基づいて算出した。Ge 濡れ層の各膜厚において、PES の形状に大きな変化はなく、吸着サイトは変化しない。主要な拡散経路であるダイマー列上の [110] 方向の拡散障壁は Ge 濡れ層の堆積に伴って増加し、Ge 吸着原子の表面拡散は抑制されることを明らかにした。一方、ダイマー列間の [110] 拡散障壁は減少しダイマー列上の拡散障壁と同程度となり、表面拡散におけるダイマー列の影響は小さくなる。これらの PES の変化は Si 表面上と Ge 濡れ層とで著しいが、濡れ層膜厚の増加による PES の変化は小さく、ヘテロ界面の影響は濡れ層数層で緩和されていることを示した。

(2) 「Ge/Si(001)ヘテロエピタキシャル成長の素過程の活性化エネルギー障壁」

Ge/Si(001)ヘテロエピタキシャル成長における表面上での様々な素過程について活性化エネルギー障壁を第一原理計算を用いて評価した。反応経路は Nudged Elastic Band 法によって決定した。Ge 濡れ層の増加によって、Enrlich-Schwoebel 障壁は大きく増加し、ステップで吸着原子が上段テラスから下段テラスへ下る過程や、下段テラスから上段テラスへ上る過程は抑制されることを明らかにした。また、二つの吸着原子から吸着ダイマーが形成される過程について、Ge 濡れ層が堆積したときのエネルギー障壁の変化は吸着ダイマーの種類によって異なることを示した。ダイマー列上でダイマー列方向に垂直な吸着ダイマーについては、Ge 濡れ層の増加によってダイマー形成より解離のエネルギー障壁が小さくなり、形成されにくくなることを示した。

(3) 「動的モンテカルロ法によるエピタキシャル成長における膜厚依存性および基板のひずみの効果に関する解析」

膜厚依存性や基板のひずみの効果を考慮した成長シミュレーションを動的モンテカルロ法により行った。薄膜成長における表面上でのそれぞれの素過程に対してエネルギー障壁の膜厚依存性やひずみ依存性を考慮した。それぞれの素過程の膜厚依存性はすぐに集束してしまうものの、活性化エネルギー障壁の変化を反映して、ヘテロ基板上での島形状はホモエピタキシャル成長の場合と異なることを示した。また、基板のひずみによって核形成速度や島の形状などを制御しうることを示した。一方、上述の第一原理計算により算出した Ge/Si(001)のエネルギー障壁を用いてヘテロエピタキシャル成長シミュレーションを行い、局所的な表面構造に着目した素過程のみでは Ge/Si(001)成長を表現できないことがわかった。これについては、島の形成から生じるひずみによる長距離の相互作用を考慮する必要があると考えられる。

## 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 9 件)

- ① Y. Doi, D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Thin Film Growth Behaviors on Stained fcc(111) Surface by kinetic Monte Carlo", Journal of Physics: Conferenece Series, 採録決定, 査読有
- ② A. Fujinami, D. Matsunaka and Y.

- Shibutani, "Water wettability/nonwettability of polymer materials by molecular orbital studies", *Polymer*, Vol. 50, pp. 716-720, (2009), 査読有
- ③ M. Yamamoto, D. Matsunaka, S. Ogata and Y. Shibutani, "Modeling of Heteroepitaxial Thin Film Growth by Kinetic Monte Carlo", *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 47, pp.7986-7992, (2008), 査読有
- ④ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Electronic states and adhesion properties at metal/MgO incoherent interfaces: First-principles calculations", *Physical Review B*, Vol. 77, pp. 165435-1-6, (2008), 査読有
- ⑤ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "First-principles Calculations of Adhesive Behavior at Metal/oxide Incoherent Interfaces", the MRS 2008 Fall Meeting Proceedings, 1137-EE05-34, (2008).
- ⑥ 松中 大介, 土井嘉治, 澁谷陽二, "薄膜成長における基板のひずみの効果に関する原子論的研究", 第13回分子動力学シンポジウム講演論文, pp. 71-72, (2008), 査読無
- ⑦ 松中 大介, 澁谷陽二, "金属/酸化物界面における酸素欠損の効果に関する第一原理解析", 第21回計算力学講演会講演論文集, pp. 139-140, (2008), 査読無
- ⑧ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Modeling Multiscale Solid Mechanical Behavior and Designing of Novel Structure", *Proceedings of the Ninth OU-DLSU Academic Research Workshop*, pp. 6-9, (2008), 査読無
- ⑨ 松中 大介, 澁谷陽二, "金属/酸化物界面の電子状態に関する第一原理計算", 日本機械学会M&M2007 材料力学カンファレンス講演論文集, pp. 49-50, (2007)
- [学会発表] (計12件)
- ① Y. Doi, D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Thin Film Growth Behaviors on Stained fcc(111) Surface by kinetic Monte Carlo", 3rd International Symposium on Atomic Technology / 3rd Polyscale Technology Workshop (ISAT-3/PTW-3), (2009).
- ② D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Kinetic Monte Carlo Simulations of Ge/Si(001) Hetero-epitaxial Growth", 4th Vacuum and Surface Science Conference of Asia and Australia (VASSCAA4), (2008).
- ③ 松中 大介, 土井嘉治, 澁谷陽二, "Ge/Si(001)エピタキシャル成長のKMCシミュレーション", 日本物理学会 2008年秋季(第143回)大会, (2008).
- ④ 松中 大介, 土井嘉治, 澁谷陽二, "薄膜成長における基板のひずみの効果に関する原子論的研究" 第13回分子動力学シンポジウム, (2008).
- ⑤ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "First-principles Calculations of Adhesive Behavior at Metal/oxide Incoherent Interfaces", 2008 MRS Fall Meeting Symposia, (2008)
- ⑥ 松中 大介, 澁谷陽二, "金属/酸化物界面における酸素欠損の効果に関する第一原理解析", 第21回計算力学講演会, (2008)
- ⑦ 土井嘉治, 松中 大介, 澁谷陽二, "KMC法を用いた薄膜成長に及ぼすひずみ依存性に関する考察", 日本機械学会関西学生開平成19年度学生員卒業研究発表講演会, (2008)
- ⑧ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Electronic States and Stability of Metal/Oxide Interface with Misfit by First-Principles Calculations", Second International Symposium on Atomic Technologies (ISAT-2), (2007)
- ⑨ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "Modeling of Multiscale Solid Mechanical Behavior and Designing of Novel Structure", 9th De La Salle University-Osaka University Academic Research Workshop & Symposium, (2007)
- ⑩ D. Matsunaka and Y. Shibutani, "First-principles calculations of coherent and incoherent metal/MgO interface", 17th International Vacuum Congress (IVC-17), (2007)
- ⑪ 松中 大介, 澁谷陽二, "金属/酸化物界面の電子状態に関する第一原理計算", 日本機械学会M&M2007 材料力学カンファレンス, (2007)
- ⑫ 松中 大介, 澁谷陽二, "第一原理計算による金属/MgO界面の電子状態", 日本物理学会第62回年次大会, (2007)
- [図書] (計0件)
- [産業財産権]
- 出願状況 (計0件)
- 取得状況 (計0件)
- [その他]
- なし
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
- 松中 大介 (MATSUNAKA DAISUKE)
- 大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号 : 60403151