

Si 基板への Au 量子ドットからの常温自発 薄膜形成機構に関する分子動力学シミュレーション

○小原慎太郎¹、奥博貴¹、高野頌¹、伊藤正行¹

¹同志社大学工学部物質化学工学科（〒京都府京田辺市多々羅都谷1-3）

1. 緒言

量子ドット物理沈着 (QDPD) 法は、量子サイズ効果による融点降下を利用して、常温でナノ粒子から自発的に薄膜を形成させる方法である。こうした微小領域における薄膜形成機構を実験的に解明するのは困難であるが、動的な薄膜形成機構を解明する手法として、分子動力学 (MD) 法^{1, 2)}が利用される。MD 計算をおこなうには扱う原子間のポテンシャル関数が既知である必要がある。

本研究では、未知である Au-Si のポテンシャル関数を *ab initio* 法で新たに決定して、Si 基板に沈着した Au 量子ドットの挙動を MD 法で解析し、QDPD 法による薄膜形成機構の解明を目的とする。

2. 計算方法

まず *ab initio* 計算で Au-Si(SiH₃)₃ から Au-Si のポテンシャルエネルギーを求めた。*Ab initio* 計算には量子計算ソフト GAMESS を用いた。基底関数には重原子の相対論的效果を考慮した SBKJC 基底関数を選択した。続いて制限開放ハートリー・フォック計算 (ROHF) をおこない、Au-Si 原子間距離ごとのポテンシャルエネルギーを算出した。モデル関数には RGL 関数を採用し、最小二乗法により RGL 関数のパラメータを決定した。

MD 計算では Si 基板上にピラミッド状の Au 量子ドットが沈着した状態を初期配置とした。NTV アンサンブルを適用し、時間刻みを 2 fs として計算をおこなった。実験系の応力状態を再現するために、系の圧力 50 Pa を Si 基板表面に垂直な方向の応力に変換して加えた。系内温度を 300 K から 400 K まで 25 K 刻みで変化させて計算をおこなった。MD 計算の結果から、平均二乗変位 (M.S.D)、動径分布関数を計算して、基板上における Au 量子ドットの拡散挙動を解析した。分子動力学計算には WinMASPHIC Pro2.0(富士通株式会社)を用いた。

3. 結果と考察

Ab initio 計算の結果 (Fig. 1) より、Au-Si 間のポテンシャルエネルギー曲線はフリーデル振動を示し、相対論的效果を示すことを確認した。

新たに決定した Au-Si ポテンシャル関数を用いて MD 計算をおこなった結果、常温で Si 基板に Au 量子ドットが沈着してから約 10ps で Au 層を形成することがわかった。

ユニットセルあたり Au₈₂×4 において拡散の温度

依存性はあられわれず、Au 膜も形成しなかった。しかし Fig. 2 より、ユニットセルあたり Au₈₂×4 の条件での拡散は温度に依存し、Au 膜を形成することがわかった。したがって Si 基板に沈着した Au 量子ドットが形成する膜構造は Au 量子ドットあたりの原子数と表面占有率に依存するといえる。

4. 結言

以上より MD によって得た拡散挙動から、QDPD 法が常温下で自発的に薄膜を形成するプロセスであることを数値シミュレーションの立場から裏付けることができた。

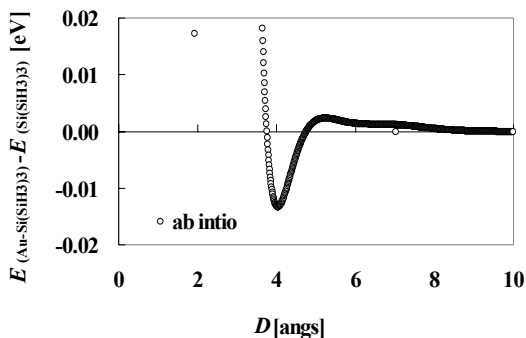


Fig.1 ROHF potential energy for Au-Si (in Au-Si(SiH₃)₃ of triplet model, -0.02<E<0.02, 0<D<10).

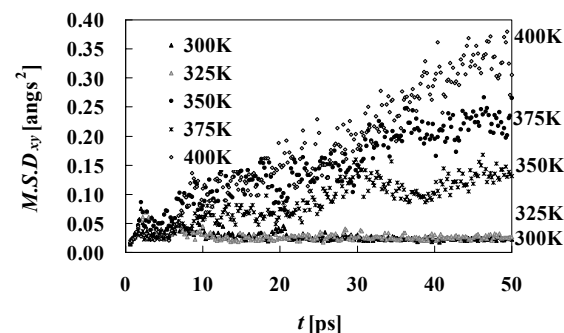


Fig. 2 The mean square displacement (XY dimension) of Au_N quantum dot surface (Pyramidal model, N=41×4 in 82×4) on Si substrate at 300, 325, 350, 375, 400 K and 50Pa.

引用文献

- 1) Milton Ohring: "Materials science of thin films", Academic Press, pp495-557 (2002)
- 2) Yves Pauleau: "Chemical physics of thin film deposition processes for micro- and nano- technologies", Kluwer Academic Publishers, pp283-304(2002)