

高速クラスターイオン衝突の MD シミュレーション (レビュー)

MD Simulations on Highly Accelerated Cluster Impact (Review)

大阪大学大学院機械物理工学専攻 山口 康隆

Yasutaka YAMAGUCHI, Dept. of Mechanophysics, Eng., Osaka University

2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan, E-mail: yamaguchi@mech.eng.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

Ion implantation をはじめとする原子, 分子, クラスタービームによる表面加工, 改質技術は主に半導体産業の分野で実用レベルにまで発展を遂げた. 理論面でも, 特に implantation 過程での 1 個のイオンの挙動に関しては 80 年代に既に Binary Collision Approximation, BCA⁽¹⁾ に基づく研究が始められている. イオンの挙動を二体衝突の連続として仮定する BCA では, 軌跡の時間発展を解く必要が無いことから数値計算の負荷が軽く, 実験結果を踏まえた TRIM⁽²⁾ などの汎用コードが現在広く用いられている. また BCA の問題点である多体衝突に関しても注入粒子付近の小領域を逐次的に分子動力学 (MD) 的に計算する (domain following) 方法が提案されており⁽³⁾, 先行イオンやそれによるダメージの影響という点を除けばかなり理解が進んできたと言えるであろう.

一方高速クラスターの固体表面衝突については, ビームを用いた実験の増加に伴い本格的に研究が始められた. 図 1 はダイヤモンド (111) 面における Ar_{961} クラスター衝突 (100keV/cluster, ~ 100 eV/atom) のシミュレーション例⁽⁴⁾であり, ここではクラスター衝突部 (図中深さ 122Å の部分) に約 70 万個の炭素原子を用いている. クラスターの場合は衝突そのものが多原子相互作用であることから古典 MD シミュレーションが中心であるが, 加速エネルギーに伴い影響粒子数が多くなり, 特に結晶面を扱う場合は, 図中に示されるように衝突に伴い強い圧縮衝撃波が形成されるため, 境界条件の影響について正確に考察しようとするれば相当数の粒子を計算する必要がある. この計算では外部領域として 180 万個相当 (結晶構造の対称性を考慮しているため実際の計算数は約 30 万個) の原子を配している.

このように, 固体面の大変形を伴う高速クラスター衝突では計算に要する粒子数がかかなり多くなるため, 粒子数 1 万以上のレベルで古典 MD 計算が可能となってきた 90 年代後半から主要な研究成果が報告され始めている. また間接的要因ではあるが, 金属系では EAM (Embedded Atom Model)⁽⁵⁾, シ

リコン, 炭素系については Tersoff⁽⁶⁾, Brenner⁽⁷⁾ などいわばスタンダード的な MD ポテンシャル関数が確立されてきたのも 90 年代であり, これらの整備が研究発展に深く寄与していることも付け加えておくべきであろう.

本稿ではクラスターの固体表面衝突のシミュレーションに関して, まず 2000 年頃までのいくつかの報告例を取り上げる. 更に最近の動向として昨年ドイツ, ドレスデンで開催された COSIRES 2002 (6th Int. Conf. on Computer Simulation of Radiation Effects in Solids)⁽⁸⁾ から最近の動向を示す.

2. クラスター衝突シミュレーションの発展経過

高エネルギークラスター衝突に関するシミュレーションについて各年代での主な報告例を表 1 にまとめた. 初期の研究成果として 1992 年の Cleveland ら⁽⁹⁾ (Georgia Tech, USA) の報告が挙げられる. ここでは 5000 個弱の原子で構成される 6 層の NaCl 結晶面上で Ar_{561} (1.863 eV/atom) の衝突をシミュレートしており, クラスターサイズ, 衝突エネルギーに対して固体面粒子数が明らかに不足しているため境界条件の影響が懸念されるものの, 固体およびクラスター内部へのエネルギー伝播について詳細な考察を加えている.

その後 1994 年に米国 Los Alamos 研究所のグループが Lennard-Jones ポテンシャルを用いた衝突系について 1024 ノードの並列計算機を用い 1100 万個程度の粒子数を扱った計算⁽¹⁰⁾を行っている. これはクラスター衝突というよりはむしろ並列計算機デモのためのチャンピオンデータの的な性格ではあるが, 大規模 MD 計算の可能性を示すものである.

1997 年以降に, いくつかのグループからシミュレーション結果が報告されており, 青木ら⁽¹¹⁾ (京大) は, アルゴンクラスター Ar_n ($n=13\sim 3000$) のシリコン表面衝突について固体表面として 20 万個程度の原子を用いて最高 80eV/atom 程度の計算を行い, 埋め込み深さ, スパッタリング効果について考察している. また同時期に Webb ら⁽¹²⁾ (Surrey, UK) は, C_{60} などフラーレン類のグラファイト表面衝突について 5 万個弱の炭素原子を用いて最高 200eV/atom の計算を行い, 加速エネルギ

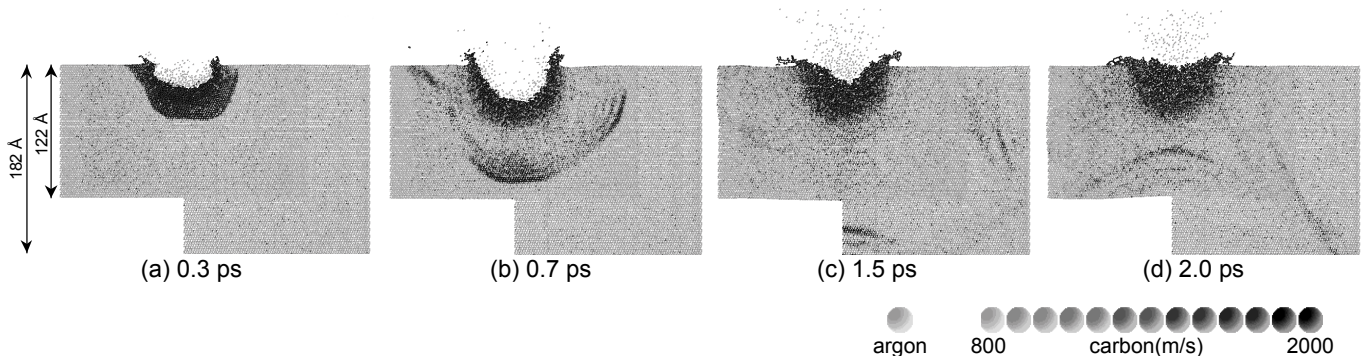


図 1. ダイヤモンド (111) 面における Ar_{961} クラスター衝突 (100eV/atom) のシミュレーション (10 Å 断面図)

表 1. MD シミュレーションに関連する主な発表

	グループ	発表 年度	ターゲット面 原子数など	クラスター 加速エネルギー
1	Georgia Tech. Cleveland ら ⁽⁹⁾	1992	NaCl 結晶 (001) 4704	Ar ₅₆₁ 1.863 eV/atom
2	Los Alamos 研究所 Lomdahl ら ⁽¹⁰⁾	1994	L-J 粒子結晶 10,000,000	L-J 粒子結晶 1,000,000
3	京都大 青木ら ⁽¹¹⁾	1997	Si (100) 262,144	Ar _n (n=13~3000) ~80 eV/atom
4	Surrey 大 Webb ら ⁽¹²⁾	1997	グラファイト 46,720	C ₆₀ , C ₇₀ , C ₇₆ , C ₇₈ , C ₈₄ ~200 eV/atom
5	Kaiserslautern 大 Henkel ら ⁽¹³⁾	1998	グラファイト 22,000	Ta _n (n=1~9) 555 eV/atom
6	Freiburg 大ほか Moseler ら ⁽¹⁴⁾	2000	Cu (001) 148,176	Cu _n (n=500~3000) 10 eV/atom
7	Birmingham 大ほか Carroll ら ⁽¹⁵⁾	2000	グラファイト 20x20x7 nm ³	Ag _n (n=20~200) ~30 eV/atom

一と貫通深さに関して実験データとの比較を行っている。更に Henkel ら⁽¹³⁾ (Kaiserslautern, Germany) は Ta_n (n=1~9) クラスターについて 555eV/atom で同様にグラファイト表面衝突を扱い、クラスターサイズと貫通深さについて考察している。

2000 年には Moseler ら⁽¹⁴⁾ (Freiburg, Germany ほか) が Cu 表面における Cu_n (n=500~3000) クラスターの蒸着過程の計算を行っている。これはクラスタービームによる薄膜生成を目的としており、必ずしも高速衝突の方向に向かうものではないが、蒸着後の表面形状に関して照射角度などに関しシミュレーション結果に基づくモデル化を行っている。また Carroll ら⁽¹⁵⁾ (Birmingham, UK ほか) は、金属クラスタードットの固体表面埋め込みの実験と並行して Ag_n (n=20~200) クラスターのグラファイト表面衝突シミュレーションを行い、クラスターサイズ、加速エネルギーと貫通深さについて系統的にまとめている。

ここで挙げた以外にも多くのシミュレーション結果が発表されているが、前述のように近年の計算機能力の向上と共に、実験結果と対比しうる現実的、系統的なシミュレーションが可能となってきたと言えるであろう。

3. 最近の動向 - COSIRES 2002 より

以下に前述の COSIRES2002⁽⁸⁾における口頭発表セッション名を列挙すると Computational Tools, Defects, Damage and Precipitation in Metals 1-2, Defects and Damage in Semiconductors and Compounds 1-2, Doping of Semiconductors, Particle-Solid Interaction, Hot Chemistry, Nanostructures, Cluster Bombardment, Formation of Thin Films, Sputtering となっている。単一イオンによる現象に関して Defects, Damage, Doping, Sputtering といったキーワードが並ぶが、これらについても大規模系を用いた古典 MD 計算が大半を占めており、Kinetic Monte Carlo 法との組み合わせによるマルチスケールモデリングを含めた研究が一つの方向性である。他では古典 MD に衝突過程における電子励起を組み込んだ計算、ポテンシャルにバイアスをかけることでμs スケールのアニール現象などのシミュレーションを可能とする Hyper-MD などが紹介されている。

クラスター衝突については、上記京大グループが 200 万個レベルの MD シミュレーションでアルゴンクラスターを取り扱っているほか、Webb らがモデル化した DNA への衝突を計算するなど、クラスターの反応を含む系に関する取り扱いが

試みられている。

また比較的低速の Soft Landing 系に関しては、表面上におけるクラスタードットとしての物性の観点から ab initio MD, Tight-Binding MD など、古典系に留まらず電子状態までを考慮に入れた計算が始められている。

4. おわりに

古典 MD では前述のチャンピオンデータの⁽¹⁰⁾を除けば、ここ数年で 100 万個オーダの計算が可能となり、100 keV/cluster レベルでのクラスター衝突の計算が報告されてきているという状況である。これまでのシミュレーション結果によると、クラスター衝突の場合、加速エネルギーと変形領域の体積が概ね比例する^(4,15,16)ため、加速エネルギーの上昇に伴いターゲット面として必要な原子数が増加することになるが、計算機性能の面だけを見れば古典分子動力学法で MeV レベルの衝突現象を扱うことはそれほど遠い先の話ではない。ただし、衝突による高エネルギー密度下で想定される電子励起によるポテンシャルの変化が古典 MD には反映されていない、あるいは弾性散乱を主体とした古典 MD でどのレベルの高速衝突まで扱おうかといった点が今後の問題となる。これらは現実には 100 keV レベルの計算でも既に懸念されることではあるが、多くのシミュレーション例で示されている実験結果との比較を見る限りでは、今のところ致命的な問題点とはなっていないようである。いずれにしてもシミュレーションの妥当性を検討しうる実験データとの比較が、古典 MD の限界点の見極め、今後の新たなモデル化へ向けての重要な足がかりとなるであろう。

最後に、本稿執筆にあたり京都大学の青木学聡博士に助力を頂いた。ここに謝意を表す。

参考文献

- (1) M.T. Robinson and I.M. Torrens, *Phys. Rev. B* **12**, 5008 (1974).
- (2) J. Ziegler, *et al.*, "The stopping and Range of Ions in Solids," (Pergamon Press, New York, 1985).
- (3) K.M. Beardmore and N. Grønbech-Jensen, *Phys. Rev. E* **57** 7278 (1998).
- (4) Y. Yamaguchi and J. Gspann, *Phys. Rev. B* **66**, 155408 (2002).
- (5) 例えば, D.J. Oh and R.A. Johnson, *J. Mater. Res.* **3**, 471 (1988).
- (6) J. Tersoff, *Phys. Rev. B* **38**, 9902 (1988).
- (7) D.W. Brenner, *Phys. Rev. B* **42**, 9458 (1992).
- (8) <http://www.fz-rossendorf.de/FWI/COSIRES2002/>.
- (9) C.L. Cleveland and U. Landman, *Science* **257**, 355 (1992).
- (10) P.S. Lomdahl and D.M. Beazley, *Los Alamos Science* **22**, 44 (1994).
- (11) T. Aoki, *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **121**, 49 (1997).
- (12) R.P. Webb, *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **122**, 318 (1997).
- (13) M. Henkel and H.M. Urbassek, *Nucl. Instr. and Meth. B* **145**, 503 (1998).
- (14) M. Moseler, *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **164-165**, 522 (2000).
- (15) S. J. Carroll, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2654 (2000).
- (16) Z. Insepov, *et al.*, *Phys. Rev. B* **61**, 8744 (2000).