

氏 名	ど い けん た ろ う 土 井 謙 太 郎
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3931 号
学位授与の日付	平 成 19 年 1 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	Theoretical Studies on Electronic Processes in Electronic and Optical Materials (電子・光材料における電子的過程に関する理論的研究)
論文調査委員	(主 査) 教 授 立 花 明 知 教 授 北 村 隆 行 教 授 木 村 健 二

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、金属リード線に見られるエレクトロマイグレーション、電界効果トランジスタに起こる絶縁膜の絶縁破壊、および光半導体材料について、量子力学に基づく場の理論的考察を行ったものであり、3編12章からなっている。

第1編は5章からなり、以下の成果を得ている。

第1章では、原子核に働く力の密度の外部印加電場に対する線形応答の場の理論的取り扱いを定式化し、それをエレクトロマイグレーション現象に応用している。その結果、エレクトロマイグレーションの経験的なパラメーターである有効核電荷の空間分布を場の量として取り扱えるようになった。さらに、金属アルミニウム結晶、表面および界面のモデルを対象として量子力学的波束を用いた第一原理計算を行い、この取り扱いを実証している。

第2章では、金属アルミニウムナノワイヤーと水素の相互作用を検討している。水素原子はナノワイヤー表面に吸着され、さらに活性化障壁を乗り越えてナノワイヤー内部に吸蔵される一方、ナノワイヤー表面を移動して水素分子として結合性脱離することが考えられ、その反応経路を明らかにしている。表面吸着した水素原子の有効核電荷の空間分布を場の量として取り扱い、動的な核電荷の電場応答の空間分布に大きな異方性があることを示している。

第3章では、金属アルミニウムナノワイヤー構造の安定性についての検討がなされており、ナノワイヤー半径が増大するにつれてナノワイヤー構造がエネルギー的にも、強度的にも安定化されることを明らかにしている。さらに、五員環ナノワイヤーから六員環ナノワイヤーへの反応経路を明らかにしている。

第4章では金属アルミニウムナノワイヤーをカーボンナノチューブに内包した構造について検討し、ナノワイヤーはカーボンナノチューブの中心軸に安定に保持されることを明らかにしている。また、その電子状態が金属的であることはアルミニウム原子の有効核電荷に大きな影響を及ぼすことが予想され、これを第一原理計算により実証している。

第5章では、リチウムやナトリウムの少数原子からなるクラスターについて、基底状態と励起状態の化学結合力特性が電子の場のストレステンソル密度の発散で定義される電子張力密度に起因することを示すことに成功している。

第2編は第6章から第9章の計4章からなり、以下の成果を得ている。

第6章では、シリコン酸化膜の絶縁破壊の原因のひとつと考えられている不純物水素種に着目し、そのエネルギー安定構造を第一原理計算により求め、 α -quartz 型 SiO_2 と α -cristobalite 型 SiO_2 の局所荷電状態の変化に対応して水素原子の安定位置が異なることを明らかにした。さらに、量子力学的波束を用いた第一原理計算を行い、水素原子の外部印加電場に対する線形応答を有効核電荷を用いて表現することに成功している。

第7章では、シリコン基板の窒化過程についての計算が行われており、基板表面の水素終端の有無によって窒化過程に違いが見られることを明らかにしている。シリコン基板の理想表面はダングリングボンドの存在により N 原子の吸着が見られるが、水素終端した表面ではポテンシャル障壁の低減がみられ、基板内への N 原子の侵入が起こりうることを示している。

第8章では、ガドリニウム酸化物の構造と電子状態に対する理論的考察が行われている。ガドリニウム原子と酸素原子の

化学結合を検討し、その化学結合力が、ストレステンソルの原子核上圧縮応力成分と原子核間引っ張り応力共有結合性成分に由来する電子張力密度に起因することを明らかにしている。

第9章では、酸化プロセスの基礎反応のひとつとして $\text{N}_2^+ + \text{O}_2$ の系についてポテンシャル面の計算のおよび波束ダイナミクス計算が行われており、 N_2^+ の振動励起により $\text{N}_2^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}_2^+$ の反応が促進されることが示唆されている。

第3編は第10章から第12章の3章からなり、以下の成果を得ている。

第10章では、窒化ガリウムナノワイヤー構造について、それらの安定構造と電子状態についての検討がなされており、ナノワイヤー構造に特有の価電子帯から伝導帯への小さなバンドギャップの存在が示されている。

第11章では、窒化ガリウムナノワイヤーおよび窒化アルミニウムナノワイヤーの構造を制御することにより、結晶とは異なる電子状態が制御可能となることが示されている。

第12章では、窒化ガリウム結晶および窒化アルミニウム結晶の成長反応についての量子化学的検討を行い、有機金属化学気相蒸着法における原料ガスの化学反応性が、電子張力密度に起因する化学結合力を制御することによって可変であることを予測している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、電子・光材料における電子的過程、特に、金属リード線に見られるエレクトロマイグレーション、電界効果トランジスタにおける絶縁破壊、および半導体レーザーへの応用を初めとする化合物半導体の電子的過程に関して、量子力学に基づく場の理論的考察を行ったものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

(1) エレクトロマイグレーションの経験的パラメーターである有効核電荷が、ヘルマン-フラインマン力に起因する静的電荷に加えて、場のストレステンソル密度に起因する動的電子流電荷テンソル密度からも生じることを示した。さらに、金属アルミニウム結晶、表面および界面の動的電子流電荷テンソル密度の値が局所的に静的電荷を大きく上回る値を持つことを示し、新しいエレクトロマイグレーションメカニズムを予測した。この場の理論的手法は、金属ナノワイヤーやカーボンナノチューブにおける電子・核複合動力学過程にも適用しうる汎用性の高い手法である。また、金属クラスター励起状態における化学結合力が、電子の場のストレステンソル密度の発散で定義される電子張力密度に起因することを示した。

(2) シリコン酸化膜中の水素原子が局所的な場の電氣的ストレスをもたらしことによるシリコン酸化膜の絶縁破壊の発生メカニズムを予測した。また、シリコン(100)表面が水素終端により化学的に不活性化されることにより、あらたに窒素原子貫入ポテンシャル障壁の減少する反応経路が生じることを予測した。水素終端しないシリコン(100)表面と窒素酸化物とが化学反応を起こしてNO分子が遊離する現象は、表面と窒素酸化物とのあいだで電子張力密度の分布交替が起こることに起因することを示した。

(3) ガドリニウム酸化薄膜構造における化学結合力が、ストレステンソルの原子核上圧縮応力成分と原子核間引っ張り応力共有結合性成分に由来する電子張力密度に起因することを明らかにした。

(4) III-V 窒化物半導体ナノワイヤー構造のバンドギャップや、化合物半導体薄膜結晶の膜厚を原子層レベルで制御する有機金属化学気相蒸着法における原料ガスの化学反応性が、電子張力密度に起因する化学結合力を制御することによって可変であることを予測した。

以上要するに、本論文は、量子力学に基づく場のストレステンソル密度や張力密度を用いて電子・光材料における電子的過程を解析する新しい手法を開発し、これに基づいて、金属リード線、電界効果トランジスタや化合物半導体における化学結合・構造・信頼性解析に関する量子力学に基づく場の理論的考察を行ったものであり、得られた成果は学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成18年12月26日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。