計算機で物質中の原子、電子をみる

Atomic and Electronic Study of Materials

白石研究室、白石賢二、押山淳、芳松克則、洗平昌晃

Shiraishi Laboratory, Kenji Shiraishi, Atsushi Oshiyama, Katsunori Yoshimatsu, Masaaki Araidai

白石研究室では、デバイスの機能設計、結晶成長の科学、空気や水の流れの科学、などミクロからマクロスケールにいたる広汎な物理現象を数理・物理的解析及び計算科学的方法によって研究しています。本研究室では計算科学的な手法を駆使して、物理現象の解明とその知見に基づく工学への応用の先端的な研究を実施しています。

振動発電技術の理論的研究

目的：カリウムイオンエレクトレットを用いた振動発電素子はその高い性能から大きな期待を集めています。カリウムイオンエレクトレットは半永久的に負電荷を保持する材料ですが、カリウムイオンエレクトレットにおける負電荷蓄積機構・保持機構は未だ解明されていません。本研究ではカリウムイオンエレクトレットの負電荷蓄積機構・保持機構の理論的解明を目指しました。

結果：第一原理計算の結果、カリウムイオンエレクトレット中には5つの酸素と結合を持つ5配位のSiO_5構造が存在することを明らかになりました（図1）。このSiO_5構造は全体として−1価に帯電し、カリウムイオンエレクトレットの負電荷蓄積の起源となります。このSiO_5構造構造は堅固な構造であるのでカリウムイオンエレクトレットの負電荷保持能力は高いことがわかりました。

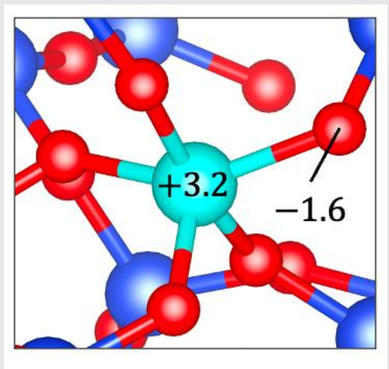

図１：カリウムイオンエレクとレット内に形成されるSiO_5構造.

フラッシュメモリの電荷トラップ機構

目的： Si_3N_4は現在の フラッシュメモリ材料として使用されていますがフラッシュメモリの電荷トラップ機構は未だ明らかになっていません。我々は第一原理計算を用いてSi_3N_4中の電荷トラップ機構を解明することを目指して研究を行いました。

結果： Si_3N_4中では電荷は図２に示すフローティング状態という物質の内包空間に波動関数が広がる特異な状態に電子がトラップされると図３に示すようにフローティング状態のエネルギー準位が大きく下がります。このことによって電荷トラップが生じることがわかりました。これはGiant Negative Uという現象でフラッシュメモリは物理学の新しい機構によって動作していることがわかりました。

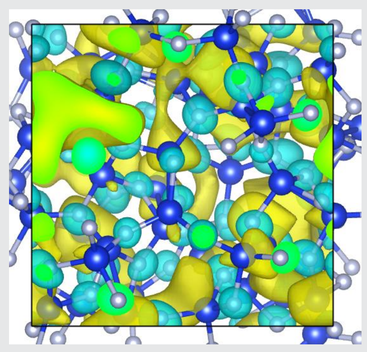

図2：a-Si3N_4中のフローティング状態

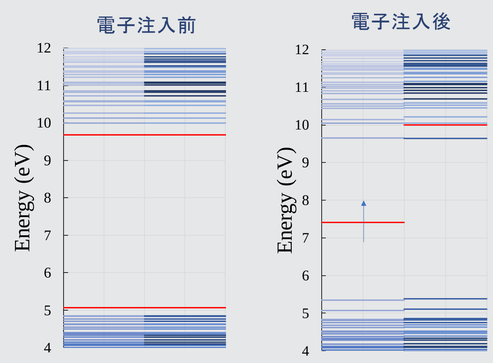

図3：電子注入前後のa-Si3N_4のエネルギー準位

GaNの結晶成長過程の原子レベルでの解析

目的：GaNのMOVPE法は青色発光ダイオードの作製等に用いられており、活発な研究がなされています。MOVPE成長は、水素や窒素のキャリアガスにより原料ガスであるトリメチルガリウム（TMG:$Ga(CH_3)_3$）とアンモニア（NH_3）を表面温度1300Kの基板に供給して行います。しかし、TMG分解の詳細な過程は未だ解明されていません。そこで、MOVPE中のTMG分解反応の主反応経路を特定する研究を行いました。

結果：TMGにH_2およびNH_3が反応したときの分解反応を考えると図４のようになります。この分解反応にはNH_2やHなど明らかに不安定な分子および原子が発生しないように選んでいます。計算した活性化自由エネルギーを用いて、反応速度を計算すると下図で示した赤色の矢印のように、NH_3とH_2が交互に反応する経路が最も反応速度が速い経路になることがわかりました。これはTMGがNH_3と反応しアミノ基が形成されても、すぐにH_2によって分解され、図５に示すように最終的にはGaH_3が形成されてこれがGaN表面に取りこまれることが明らかになりました。

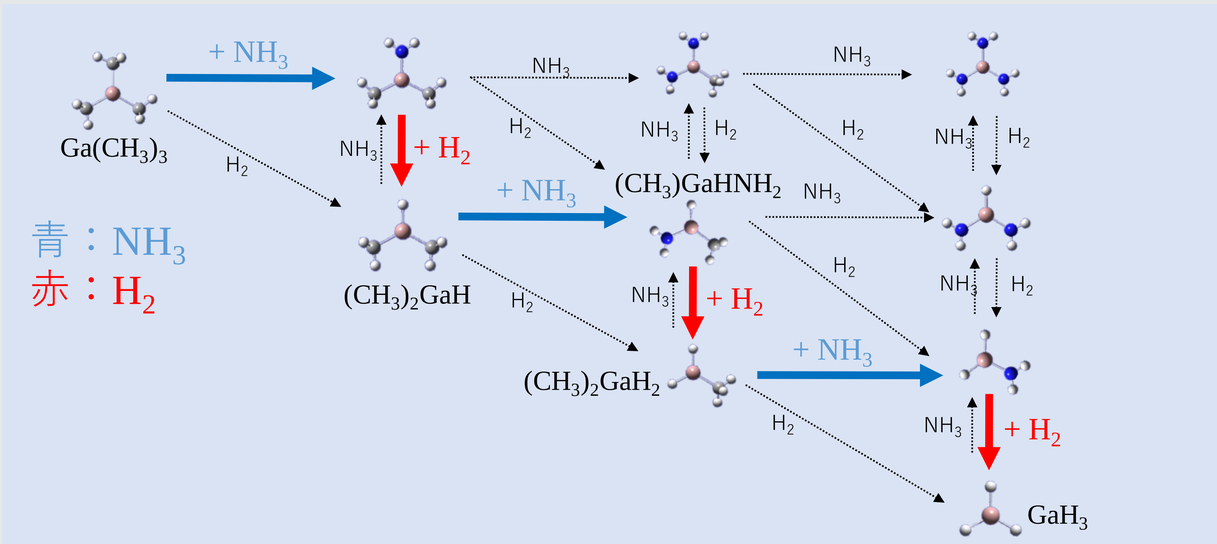

図４：第一原理計算で得られたTMGの分解過程.

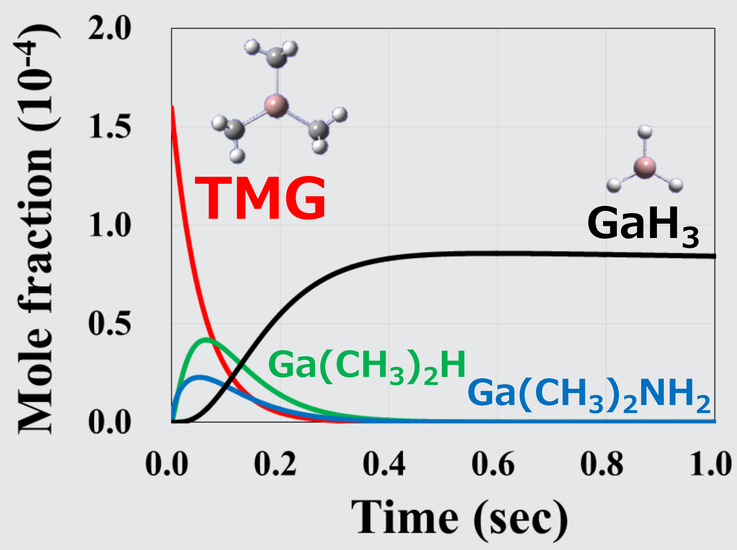

図５：成長に関わる各分子のモル分率の時間変化