

審査の結果の要旨

氏名 宅間絵理子

結晶粒界・界面は結晶内部や非晶質とは異なる特有の原子構造を持つとされ、第三の構造とすら呼ばれて、Gleiter（独）が創始したナノ結晶粒材料のように、粒界誘起の新規物性を目指す具体的な技術的展開も、拡がりを見せつつある。しかし、ナノ結晶材料の成功が、やや限られたものであったことが示すように、今いきなり「界面技術」をプロセス化して具体化するには、まだ基盤的知識の集積が十分とはいえない。少なくとも界面の構造を電子構造との相関で把握しておくことは必要である。こうした認識の上に立ち、本論文では共有結合性の強い、広バンドギャップ物質の SiC およびややイオン性のある GaN について、粒界原子構造を超高分解能電子顕微鏡により極めて精確に調査し、第一原理計算を援用して、物性に直接反映されるべき電子構造との相関を考察している。論文は 6 章で構成されている。

第 1 章は緒言である。界面研究の中での本研究の位置づけを示した後、将来界面技術を具体化するために今解決すべき課題を抽出し、本論文の目的について述べている。

第 2 章は、本研究を行う上で用いた実験方法についてその理論、装置の性能等について述べている。界面研究に必要不可欠である電子顕微鏡、とりわけ超高分解能電子顕微鏡の高分解能位相コントラスト結像理論、および並行して行った、電子計算機による第一原理計算の概要を述べた後、実験装置の概要をまとめている。

第 3 章では、本研究で最も重要となる超高分解能電子顕微鏡観察像により原子構造を原子種まで決定するための電子光学的条件および試料に要求される条件、観察時に発生する可能性のある問題点についても述べている。従来は格子像のシミュレーションや構造計算による、間接的予測を余儀なくされていた原子構造特定を、超高分解能電子顕微鏡によって直接実験的に行うことの可能性を追求し、その結果 SiC において、分解能 0.1nm の透過型電子顕微鏡を用いることにより、試料厚さ 4nm 以下であれば試料を弱位相物体として扱うことが出来、原子配列のみではなく、原子種の識別・原子位置の特定が観察像から可能であることを示している。また同時に GaN においても、超薄片試料（厚さ 3nm 以下）において、弱位相物体近似を適用でき、原子種を原子番号に依存したコントラストで捉えることが出来ることを示し実際に撮影して、上記の条件において、観察像から直接原子ポテンシャルの形状、即ち原子種の識別と原子配列の特定が可能であることを示している。

第 4 章では、3 章で述べた超高分解能電子顕微鏡像より直接原子構造決定を行う方法を用いて、SiC 結晶粒界、GaN 結晶粒界の原子構造を原子種まで決定し、SiC 結晶粒界の特徴、及び二元素共有結合物質粒界の原子構造の特徴を抽出している。数種類の低エネルギー結晶粒界を比較することにより、SiC 結晶粒界においては、種々のパラメータのうち、Si-Si 結合対、三配位 C 原子を持ち、結合角の歪みの小さい構造が低エネルギーであること

を示している。これを、共有結合性の高い二元素物質粒界の特徴とし、この特徴と GaN 結晶粒界の特徴を比較している。GaN 結晶粒界においては、SiC 結晶粒界に見られるような奇数員環は存在せず、偶数員環のみからなる構造が典型的粒界構造であることを示している。これらのことから、二元素共有結合物質粒界においては、イオン性が高いほど同種原子結合の存在はエネルギーを上げると結論している。

第5章では、第4章で解明した SiC 粒界原子構造が持つ電子構造の特徴を第一原理計算により解析した結果について述べている。SiC 粒界原子構造解析より最も低エネルギーであると示した粒界原子構造について電子状態計算を行っている。第一原理計算により Si-Si 同種原子結合対は、原子間距離だけではなく、価電子密度からも結晶 Si に近い状態をとることを示している。SiC 中にありながら、単独で存在する Si-Si 対が結晶 Si の性質を示すことが示唆されている。また、三配位 C 原子は、この原子に局在する準位をフェルミレベル付近に作ることを示している。これらのことから、少数原子の組み合わせにより原子サイズの導電通路などの原子尺度の電子構造設計の可能性があると提唱している。

第6章は総括である。

以上要するに、本論文は、SiC および GaN の結晶粒界原子構造・電子構造解析を超高分解能電子顕微鏡と第一原理計算を用いて行い、それら粒界の特徴を抽出することにより、界面原子構造と電子構造の物性との相関を原子尺度で明らかにすることに成功した。これは、これまでの結晶の幾何学に依存した結晶界面学に、物理的内容を付与するものであり、ひいては、界面誘起新材料の可能性をも示唆するものである。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。