

論文の内容の要旨

論文題目 「第一原理計算手法に基づく光ファイバー材料中の点欠陥に関する研究」

氏名 田村 友幸

本研究の目的は、光ファイバー中の点欠陥の構造や基礎的性質を微視的レベル、とりわけ電子構造まで掘り下げて解明し、光デバイスプロセス技術の発展に寄与することである。本研究では、Ge 添加 SiO₂ ガラスで観測される光誘起屈折率変化を取り上げた。このガラスは光ファイバーのコアに用いられるなど、実用上極めて重要であり、光誘起現象は光通信技術の様々な分野で注目されている。光誘起現象はファイバー内に存在する点欠陥、特に酸素欠乏欠陥の構造変化と密接に関連すると考えられており、機構解明が重要課題であった。しかしながら添加 GeO₂ が光誘起屈折率変化において非常に重要な役割を担うと考えられるにもかかわらず、GeO₂ 中の点欠陥を扱った理論研究はなく、また光学特性の考察もなされておらず、微視的機構の解明には至っていないのが現状である。そこで、第一原理分子動力学法を用いて Ge 添加 SiO₂ ガラス中の点欠陥の原子構造および電子状態に関するシミュレーションを行い、電子論の観点から光誘起屈折率変化を考察することにより、光デバイスプロセス技術の発展に寄与することを本研究の目的とした。

本論文の全 6 章から構成されており、構成内容は以下の通りである。

第 1 章では計算機および計算材料科学の歴史を回顧し、その現状を明らかにすることによって、計算材料科学が材料研究において欠かせない存在であり、実験的研究では困難とされている分野でその威力を発揮することができることを述べた。さらに最近の光ファイバー中の点欠陥に関する理論的研究の結果をまとめ、まだ解明されていない問題点を明らかにすることによって本研究の目的を明確にした。

第 2 章では本研究に用いた固体電子構造の計算方法の理論的な基礎を述べた。まず、第一原理的計算法の基礎となる密度汎関数理論およびバンド計算法について説明した。次にポテンシャルの扱いや全エネルギーの計算法、Hellmann-Feynmann 力などの計算に必要な理論を説明した。そして、第一原理分子動力学法の原理と共役勾配法について説明した。

第 3 章では並列化導入による第一原理計算の高速化について述べた。共役勾配法に代わり RMM-DIIS(Residual minimization method - direct inversion in the iterative subspace)法を用いた第一原理擬ポテンシャル法プログラムを新たに開発し、バンド間並列化を行った。2 種類の比較的大きな系でのテスト計算結果を示し、RMM-DIIS 法によるバンド間並列の効率について考察した。

第 4 章では光ファイバー材料の計算機シミュレーション結果を示した。

4.1 節では欠陥を含まない SiO_2 ガラスおよび GeO_2 ガラスのシミュレーション結果を示した。まず古典分子動力学法によりガラスの初期構造を作成し、得られた構造をさらに第一原理分子動力学法により構造緩和を行うことにより SiO_2 ガラスおよび GeO_2 ガラスを得た。得られたガラス構造の原子構造と電子状態を詳細に検討し、2 つのガラスの違いを明らかにした。

4.2 節では光ファイバー材料中の酸素欠乏欠陥のシミュレーション結果を示した。4.1 節で得られた安定構造から酸素を抜き取って構造緩和を行い、酸素欠乏欠陥の安定構造を得た。原子構造、電子状態、欠陥形成エネルギーを詳細に検討し、光誘起屈折率変化の起源について考察を行った。

4.3 節では光ファイバー材料中の酸素欠乏欠陥の光誘起構造変化のシミュレーション結果を示した。スーパーセル内から電子 1 個を抜き取り、原子間距離を固定した構造緩和を行い、酸素欠乏欠陥の構造と全エネルギーの関係から光誘起構造変化のメカニズムについて考察を行った。

第 5 章では光ファイバー材料の光学特性の計算機シミュレーション結果を示した。酸素欠乏欠陥の構造変化前後での誘電率の計算を行い、光誘起屈折率変化のシミュレーションを行った。

第 6 章では結果を総括した。

本研究の成果とその意義は以下のようにまとめられる。

- (1) 第一原理分子動力学法により初めて GeO_2 ガラスおよび内在する酸素欠乏欠陥を扱い、 SiO_2 ガラスと比較した。その結果、 GeO_2 ガラス中では酸素欠乏欠陥の形成エネルギーが小さく、多くの酸素欠乏欠陥が形成される可能性のあることを示した。
- (2) 励起状態での酸素欠乏欠陥の構造変化の計算機シミュレーションを行い、酸素欠乏欠陥 $\text{Ge}\cdot\cdot\text{Ge}$ が $\text{Ge}\cdot\text{E}'$ に構造変化することを示した。
- (3) 誘電率の計算機シミュレーションを行い、酸素欠乏欠陥の構造変化に伴い、屈折率が増加することを示した。
- (4) (1)-(3) から、 Ge 添加 SiO_2 ガラスでは特に GeO_2 中において極めて多くの酸素欠乏欠陥が存在し、これらが $\text{Ge}\cdot\text{E}'$ 中心へと構造変化することが、 Ge 添加 SiO_2 ガラスの光誘起屈折率変化の要因と考えられる。光誘起屈折率変化の理論的研究は本研究が初めてである。ただし、吸収スペクトルの変化だけでは不十分であり、酸素欠乏欠陥の構造変化に伴う高密度化による屈折率増加のモデルを提唱した。
- (5) 酸素欠乏欠陥は、ファイバーの透過損失を高めたり、濃度が製造プロセスに大きく依存するなどの問題点がある。そこで、電子構造の詳細な分析から新たな電子捕獲中心のモデルを提唱し、 GeO_2 クラスターの大きさを制御することにより、構造欠陥がなく光に対して極めて安定なガラスでも効率的にレーザー光による書き込みができる可能性を示した。

(6) 屈折率(誘電率)の計算は非常に多くの計算時間が要する。しかしながら比較的大きなスーパーセル(原子数 96)を用いたにもかかわらず、屈折率変化を算出することにできた。このことは、開発中の誘電率計算プログラム「Phase」が様々な系に適用できることを示している。例えば、半導体分野において次世代 CMOS デバイスに求められている High-k ゲート絶縁膜材料の探索などに適用することも可能であり、本研究は新たな材料や技術の開発に大きく寄与するであろう。