

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 王 昊

西暦 2000 年、立方晶系窒化シリコン化合物、 Si_3N_4 が直接遷移型ワイドエネルギーギャップを持つ物質であるという理論的予測が発表され、それ以降、次世代半導体デバイス材料の候補として多くの窒素化合物が注目されている。本論文は、第一原理電子論計算手法を用いた理論的手法により、 Si_3N_4 、 Ge_3N_4 化合物を基礎とした窒素化合物の電子的及び光学的特性の解明と特性向上を目指した、半導体特性の予測・設計に関する研究である。本論文は 6 章で構成されている。

第 1 章では、まず本研究の背景が述べられ、 Si_3N_4 や Ge_3N_4 などについての従来研究の紹介とまとめがなされている。これを踏まえ、(1)特に、最近その存在可能性が指摘された Olivine 相 Ge_3N_4 (高温、高圧相) と、同じ結晶系を持つ関連する物質の存在可能性を理論的に明らかにする事は、合成の難しい窒素化合物を探索する上でひとつの指針を与えることができること、(2)さらに、これら窒素化合物の光学特性向上を理論的に予測することが、デバイス開発への応用として重要であると考えられること、以上の 2 点が重要であると考え、本研究での問題として設定している。特に後者に対しては、Olivine 相と立方晶系 Spinel 相の電子構造計算結果に基づき、元素置換 (ドーピング) による窒素化合物の誘電特性向上の可能性を探ることが重要であるとしている。

第 2 章では、第一原理計算の基になっている密度汎関数法、局所密度近似、そして、本研究で採用した FLAPW 法 (補強された平面波法 (APW 法) にフルポテンシャルと波動関数の線形化近似を加えた計算手法) について述べている。さらに、本研究で注目した誘電関数の定式化について述べている。

第 3 章では、Olivine- Si_3N_4 と Olivine- Ge_3N_4 の基底状態を求めるため、原子配置構造の最適化計算を行い、さらに、基底状態での相安定性、構造特性、電子構造、誘電関数などを計算している。その結果から、Olivine- Si_3N_4 が準安定相として存在し得ること、一方、Olivine- Ge_3N_4 は Spinel 相に比べエネルギー的に常に高

い状態にあり、安定相として存在することは難しいことを明らかにしている。さらに誘電関数に関しては、Olivine 窒素化合物の誘電関数の最大値が Spinel 相よりはるかに低いことを計算によって示し、誘電関数の最大値がより大きな値を持つ窒素化合物としては、Spinel 相が比較的有利であることを明らかにしている。

第4章では、単純 Spinel もしくは二重 Spinel 構造を持つ8種類の IVA 族-窒素化合物に焦点をあて、結晶形成エネルギーと誘電関数の二つについて計算を行い、特性の評価と検討を行っている。その結果、誘電関数の最大値を見た場合、三元化合物 SiGe_2N_4 がより良い特性を持つ物質であるとしている。さらに誘電関数の最大値を導出するバンド間遷移を電子構造から同定し、その遷移に対応する状態の電子軌道成分の分析に基づき、p 軌道を占有する電子数を元素置換によって調整することにより、その最大値を高めることが可能であることを指摘している。

第5章では、第4章での結果を踏まえ、 SiGe_2N_4 に対して IIIA 族元素と VA 族元素による元素置換効果の検証を行っている。置換する元素の種類とその結晶学的占有位置及び置換元素濃度（置換率）を変化させた場合の電子構造計算を行い、誘電関数に対する元素置換効果の傾向を明らかにしている。さらに、これは、電子添加もしくはホール添加の影響と、置換元素の族の違いから来る電子構造の変化から解釈ができることを明らかにしている。特に SiGe_2N_4 の四面体位置となっているシリコン元素を 50%ガリウム元素に置換すると、誘電関数の最大値が置換前の 13.1 から 35.8 に大幅に上昇するという興味深い結果を得ている。

第6章は結論であり、本論文で得られた結果をまとめている。

以上のように、本論文は IVA 族-窒素化合物への第一原理的計算手法を適用し、高誘電特性を持つ材料設計指針を与えており、システム量子工学、特に工学基礎、電気電子工学、材料工学の分野に対して寄与するものと認められる。

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。