

論文審査の結果の要旨

氏名 大沼 敏治

エネルギー・環境・経済をめぐる世界情勢は複雑さを顕在化しつつあるが、この現代的課題を解決するための技術としてエネルギー関連分野の材料技術はこれまで以上に重要度を増大させつつある。本論文は、そのための基礎基盤の確立を目的とし、計算技術を活用して、材料探索の効率化、材料の損傷と劣化の評価、半導体絶縁膜界面の界面準位の評価、化学反応機構のメカニズム解明についての研究成果をまとめた論文であり、8章から構成される。

第1章は序論であり大規模計算な第一原理計算による無機材料の設計についてその必要性と計算手法の基礎について述べ、第2章では新しい波長領域において発光する材料について、歪みによる発光特性への影響、直接遷移のための基板、積み重ね層数の設計、三元系 AlAs/AIP と四元系 AlAs/GaP 超格子の発光効率の評価など、半導体レーザー用の半導体超格子の設計結果を紹介している。

第3章では軽水炉で用いられる構造材料であるフェライト鋼やオーステナイト鋼の経年変化に関連した研究としてフェライト鋼やオーステナイト鋼を模擬した bcc 鉄および fcc 鉄中における原子空孔と固溶原子の相互作用について第一原理計算により系統的な解析を行い、固溶原子の中で置換型原子よりも格子間型原子の方が原子空孔との結合エネルギーが大きいことを示し、さらに原子空孔と固溶原子の結合エネルギーの起源について、新しく歪み結合エネルギーと電子的結合エネルギーの観点から解析し、空孔の移動機構や固溶原子のクラスタ化などのメカニズム解明のための基礎的な知見を提示している。

第4章では二酸化ウランおよび二酸化セリウムの欠陥の安定性について第一原理計算を試み、二酸化ウランにおいて酸素が過化学量論的にふるまうという計算結果が得られ、また二酸化ウランでは格子間の酸素が生じやすいのに対して、二酸化セリウムでは出来にくいこと、ウランの格子間原子は生じにくいのに対してセリウムの格子間原子は生じやすいなどの違いがあり、これらを考慮に入れて実験を進める必要があることを示している。

第5章では、省エネルギーという観点から低損失のパワーエレクトロニクスデバイスの材料として着目されている SiC 熱酸化膜の界面準位のシミュレーションを行い、SiC 熱酸化膜の様々な欠陥構造による界面準位を計算し、窒素アニーリングやアルミニウムのドーピングによる界面準位の影響などを明らかに成果としてまとめている。

第6章においては大規模な第一原理計算により、これまで非常に困難とされてきた第一原理分子動力学法による酸化過程を含む化学反応のシミュレーションに成功し、SiC 熱酸化膜の酸化過程の動的シミュレーションの結果を報告している。

SiO₂/4H-SiC(0001) 界面における酸化は、SiC 界面の Si 原子が徐々に酸化されていくことにより進んでいき、酸化の過程で SiC 半導体の特性低下の原因である C クラスタ

が形成されることが明らかになり、また C 面における熱酸化では、界面における C 原子の拡散が Si 面よりも容易であることから、C 面において Si 面よりも酸化速度が 10 倍以上速い原因の一つであると説明し、C 面における熱酸化では Si 面酸化に比べて C クラスターの大きさが小さいことを明らかにしている。また、C 面の熱酸化における温度を変えたシミュレーションにより、高温 (2500K) では SiC が一層ずつ酸化するのに対して、1500K では SiC と C が同時に酸化する二層酸化が起きていること、すなわち温度により酸化メカニズムの違いあること、さらに、界面準位の低減に効果のある NO アニールングのシミュレーションでは、界面に N 原子が入っていく様子と、ある密度以上になると N 原子の密度が飽和し、窒素分子として拡散していくとしている。

第 7 章においては大規模計算による無機材料設計に関する現状と展望について論述し、10 万コアを越えるようなスーパーコンピュータにより第一原理計算による物質設計、物性予測シミュレーションにおいて今後どのような発展が期待されるかについて述べた。

第 8 章においては本研究で得られた知見をまとめた。

以上の成果は、エネルギー関連の多様な応用分野に使用される材料の内部組織についてのミクロな描像を提供し、材料開発や評価のため基礎基盤となるべきものであり、工学にも環境学にも寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (環境学) の学位を授与できると認められる。