

# 長期海外派遣報告書

MERIT3期生・物理工学専攻押山研究室  
博士課程1年 李 瀚

## 1. 概要

海外派遣期間 2015年8月31日～2015年10月20日

共同研究期間 2015年8月31日～2015年12月11日

派遣先 Institut de Physique et de Chimie de Strasbourg (IPCMS)

指導教員 Prof. Mauro Boero

研究課題 第一原理計算によるSiC[000-1]面及び[11-20]面の初期酸化に関する理論的研究

## 2. 研究背景

受け入れ先研究者のBoero教授は第一原理分子動力学法コードCPMDの主要な開発者であり、今もなお精力的に手法開発を行っている。第一原理分子動力学法では電子を量子力学的に取り扱っており、経験的ポテンシャルによる分子動力学法では取り扱うことのできない結合の形成や切断といった化学反応のダイナミクスを見ることができ、これにより実験では直接観測することができない原子スケールでの化学反応をシミュレーションし、詳細な反応経路についての知見を得ることが可能な強力な手法である。しかしながら、高い反応バリアを擁する化学反応は希少事象に属しており、典型的なシミュレーション時間で扱うのは困難である。それを効率的に探索するために束縛条件付き分子動力学法と組み合わせたBluemoon法や自由エネルギー面を直接サンプリングするMetadynamics法がある。

昨年の10月頃にBoero教授が押山研究室に研究訪問に来られたことをきっかけに、私はBluemoon法といった自由エネルギー面を探索する手法を用いたSiC酸化を取り組み始めた。今回の長期派遣では前半が私がフランスに訪問し後半ではBoero教授が東京大学を訪問して、合わせて3ヶ月強の期間に渡って密に議論し共同研究を行った。特により複雑な反応に関する自由エネルギー面を探索するためのMetadynamics法を学び、それをSiC表面酸化に適応した。

## 3. 研究内容

SiCは高温・高周波数など厳しい条件下での動作性能が優れているワイドギャップ半導体であり、特にタービン・モーターといった大電力消費部分でSiを代替することを期待される次世代材料である。既存の技術によるデバイス作成にて生じる酸化物界面において、著しい電子特性の低下が確認されており、特に界面における電子移動度がバルクの10%程度しか達成することができていない。SiCの酸化膜はSiO<sub>2</sub>であり、熱酸化することで形成されるのはSiと共通である。そのためSiと同様、熱力学的モデルであるDeal-Groveモデルを当てはめてSiO<sub>2</sub>膜圧を制御することができる。相違点はSiCでは酸化後にCがCO/CO<sub>2</sub>の形で放出されなければならないことにある。この際に二種類の新しい反応が酸化時に加わり、それらはCの酸化と酸化されたCの放出である。これらの反応の際に界面特性を損なうSiC特有の欠陥が系に導入されると考えるのが自然であり、その原子スケールでの反応機構を知ることは界面特性の向上に有用である。

本研究では特にCの放出に注目し、比較的な単純な[000-1]面(C面)における酸素被覆率の違いなど周辺環境の異なる際のCO脱離の反応バリアを計算した。その結果次々近接の原子配置の違いによっても反応バリアが1 eV程度変動することがわかった。この値は結合エネルギーのオーダーと同じであり、本来近接原子の配置の違いによる影響に相当することになる。これは酸素の

吸着・脱離による電子状態への影響が広い範囲に渡って影響を及ぼすことを示唆しており、酸化の原子スケールにおける反応メカニズムによって反応経路が大きく変わることを意味している。

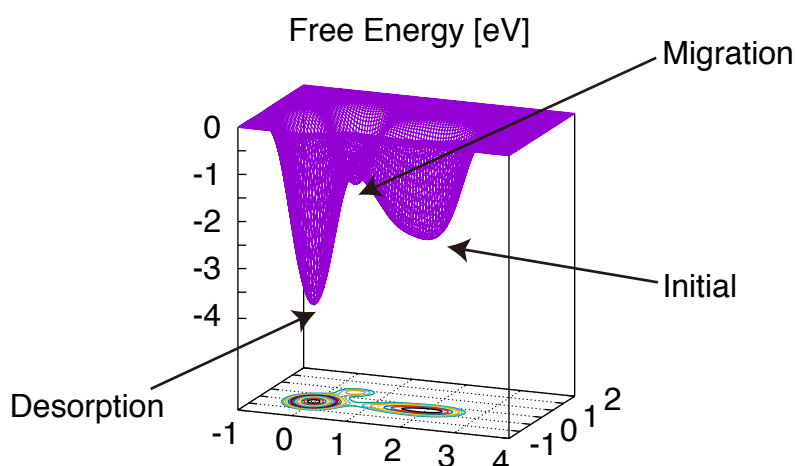
またCはCO/CO<sub>2</sub>の形で放出されなければならないが、最近実験的に最高レベルの電子移動度を達成した[11-20]面ではそもそもCO/CO<sub>2</sub>を形成する反応が自明ではない。この面についてはエネルギー的な安定性からのCO/CO<sub>2</sub>形成を密度汎関数理論を用いて探索した後、ダイナミクスとして到達しうる安定・準安定状態を第一原理分子動力学法を用いて計算した。その結果、[11-20]面では擬似的な[000-1]面様のCO形成のほか、表面においてCO<sub>2</sub>も形成しうることがわかった。[11-20]面では引き続きこれらのCO/CO<sub>2</sub>が表面から脱離するための反応バリアを計算している。

#### 4. 滞在中の生活

ストラスブールはフランスとドイツの国境に位置した都市である。徒歩でほんの一時間程度でライン川を渡って国境を渡ることができる。そのためフランスとドイツの文化の融合した豊かな歴史を持つ。典型的なヨーロッパの歴史ある街並みが保存されており、市の最も高い建物はストラスブール大聖堂で、この建物はかつては150年以上に渡って世界で最も高い建物であった。ストラスブールの属するアルザス地方はワインの産地として有名であり、私が滞在した秋ではちょうど新しいワインが出荷される時期で、各スーパーには充実したワインコーナーが設けられていた。また、ストラスブールは街中が花に彩られた美しい街としても有名である。近くにはフランスの最も美しい村に認定されたコルマルなどがある。

#### 5. 謝辞

今回の渡航に関して多くの方にお世話になりました。まず私がフランスに滞在した際に経済的にご支援くださったMERITプログラムに深く感謝いたします。また、特に受け入れを許可し共同研究を行ったMauro Boero先生と、海外派遣の後押しをしてくださった指導教官である押山淳先生にお礼申し上げます。Boero先生にはフランスにおいてフランス語がまったくわからなかった私の私生活にまでお世話になって、大変感謝しております。またAssil Bouzid博士、Marwan Deb博士、Anatolie Gavriluta博士、そしてBoero先生の研究室の学生であるBurak Ozdamarさんには日々のディスカッションや昼食でお世話になりました、ありがとうございます。最後に、このような素晴らしい機会をいただけたことを心よりお礼申し上げます。



表面のCO脱離に関わる自由エネルギー面。反応座標は脱離するCOのCに対する配位数である。表面では真空中に脱離するほか、表面での拡散も考えられる。ここでは脱離の反応バリアは1.5 eVである。