

審査の結果の要旨

氏名 李 文文

固体中の原子拡散は古くから研究されている問題であるが、近年の情報・エネルギーデバイスの進歩に伴い、原子レベルでのより深い理解が求められている。しかしアモルファス固体中の拡散については、拡散原子の周辺環境が多様になるため、第一原理計算では計算量が膨大となり、従来の経験的原子間ポテンシャルでは信頼性が乏しくなってしまう、原子レベルでの解析のための適当な方法が無かった。本論文は、ニューラルネットワークと第一原理計算データを用いた原子間ポテンシャル作成法を用いてアモルファス固体中の原子拡散を原子レベルで解析できる原子間ポテンシャルを作成し、これを用いて拡散挙動を解明することを目指したものである。本論文は6章からなる。

第1章は緒言である。原子スイッチと全固体電池を例に、アモルファス固体中の原子拡散が情報・エネルギーデバイスにおいて重要であることを述べ、その研究の現状を概観した後、アモルファス固体中の原子拡散の理論計算による研究の現状を概観し、適当な方法論が無いために拡散挙動への理解がまだ不十分であることを指摘した。さらに本研究で用いるニューラルネットワークと第一原理計算データを用いた原子間ポテンシャルについての研究の現状を概観し、このポテンシャルがアモルファス固体中の原子拡散挙動の研究にも有望な方法であるにもかかわらず先行研究は少ないことを指摘して、本研究の目的を明確にした。

第2章では、本研究で用いられている計算手法を述べている。原子拡散挙動の理論計算に広く用いられている分子動力学法、Nudged Elastic Band法、動的モンテカルロ法の3つの方法と、これらの方法を用いる上で必要となる原子間力やポテンシャルエネルギー面を計算するために用いられる第一原理計算および経験的原子間ポテンシャルについて概略を述べた後、ニューラルネットワークを用いた原子間ポテンシャルの作成法について、第一原理計算データを用いたパラメータ値の最適化も含めて詳しく述べている。

第3章では、アモルファス酸化タンタル中の銅原子拡散を扱うためのニューラルネットワークポテンシャルの作成とそれを用いた計算結果を述べている。ここでは、銅原子の拡散が母体原子の拡散より顕著であることを念頭に、銅原子の挙動のみを陽に考慮し、その周囲の酸化タンタルの構造緩和を陰に取り込んだポテンシャルを提案した。作成したポテンシャルが、ポテンシャル作成時に用いたのと同じ母体アモルファス中に銅原子を挿入した構造の全エネルギーや、銅原子の準安定位置および拡散経路に沿ったエネルギー変化について、第一原理計算結果をよく再現できることを示した。さらに、得られた拡散経路およびそのエネルギー障壁値を用いて動的モンテカルロ法で銅原子の伝導度の温度依存性を計算して得られた活性化エネルギー値 (0.67eV) も実験値 (0.64eV) とよく一致した。

第 4 章では、アモルファスリン酸リチウム中のリチウム原子拡散を解析するためのポテンシャルの作成とそれを用いた計算結果を述べている。作成したポテンシャルは、拡散経路、その障壁エネルギー値、伝導度およびその温度依存性から見積もられた活性化エネルギー値について、第一原理計算とよく一致した。さらに、ポテンシャル作成時に用いたスーパーセルよりずっと大きい 1006 原子を含むスーパーセルでの計算では、 P_2O_7 ユニットの形成等、実験で見られるアモルファス構造の特徴をよく再現し、また拡散の活性化エネルギーについても実験値 (0.55eV~0.58eV) とよく一致する値 (0.55eV) を得て、作成したポテンシャルがパラメータ最適化に用いたアモルファス構造だけでなく、他の構造の研究にも用いることができる汎用性を有していることを示した。

第 5 章では、アモルファスアルミナ中の銅原子拡散を解析するためのポテンシャルの作成とそれを用いた計算結果を述べている。ここでは、密度や組成（酸素とアルミニウムの比率）の異なる系を扱える汎用性を備えたポテンシャルの作成を目指し、第一原理計算のエネルギー値との比較およびアルミナ構造の特徴についての実験・理論計算の先行研究との比較から、所望のポテンシャルの作成に成功したことを示した。さらに、銅原子拡散挙動の密度依存性および組成依存性に関する予備的な結果を得ている。

第 6 章は総括である。

以上のように、本論文は、アモルファス固体中の原子拡散を解析するための原子間ポテンシャルをニューラルネットワークと第一原理計算データを用いて作成し、作成したポテンシャルの性能を検証した。拡散経路とその障壁エネルギー値、伝導度とその温度依存性から見積もった活性化エネルギー値などについて第一原理計算や実験結果とよく一致する結果を得、作成したポテンシャルの性能を確認できた他、密度や構成元素比の変化を含め、ポテンシャル作成に用いた以外のアモルファス構造における原子拡散にも適用可能なポテンシャルを作成できることを示し、ナノスケール物性に重要な素過程を理解するための有用な方法論の知見を得た。よって本論文のナノスケール物性学、計算マテリアル工学への寄与は大きい。

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。