

Title	Theoretical Investigations on the Possible Nanoscale Systems for Electronic and Magnetic Devices
Author(s)	メラニー, ヤダオ ダビッド
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/48646">https://hdl.handle.net/11094/48646</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">＜a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"&gt;https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> >大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	<sup>メラニー</sup> <b>Melanie</b> <sup>ヤダオ</sup> <b>Yadao</b> <sup>ダビッド</sup> <b>David</b>
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 2 2 0 0 9 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 20 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当  工学研究科精密科学・応用物理学専攻
学 位 論 文 名	<b>Theoretical Investigations on the Possible Nanoscale Systems for Electronic and Magnetic Devices</b> (ナノスケール電子・磁気デバイス材料に関する理論的研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 笠井 秀明  (副査) 教 授 八木 厚志    教 授 菅原 康弘 理学研究科教授 笠井 俊夫

### 論 文 内 容 の 要 旨

Density functional theory (DFT)-based total energy calculations were performed in order to investigate and understand the mechanisms of the bond-making and bond-breaking between the interfaces of different materials. Aside from total energies, structural optimization, charge densities, local density of states, band structures were also obtained with the help of different computational models for different material-surface interface systems. These are important factors in determining the reaction properties of the interfaces which can be used in designing possible nanoscale components for electronic and magnetic devices. Different materials such as thermoplastics and carbon nanotubes on metal surfaces, and gas molecules reacting on a metal oxide surface were utilized for the material-surface interaction. The study aimed to optimize the reaction properties of different materials with surfaces to be used in electronic devices, including components for utilizing and enhancing energy resources. These investigations serve as groundwork to expand and modify nanostructures that can be very useful to produce nanoscale devices.

A brief discussion on the theoretical basis was described in Chapter 1. The program codes and the parameters used were summarized, including the approximations used in the study.

Chapter 2 covered the discussion for the thermoplastics. The adhesion strength of polybutylene terephthalate (PBT) on some metal atoms was investigated using density functional theory-based total energy calculations. The PBT monomer adhered strongly to an aluminum atom while the aluminum atom placed on top of a bulk PBT demonstrated the strongest binding energy. The interaction occurred mostly at the *s* and *p* orbitals of oxygen in PBT and the aluminum atom. Moreover, PBT was more stable at the vertical orientation rather than horizontal manner when placed near the aluminum surface. Among the metal atoms Ti, Ag, and Au, the Au demonstrated the weakest reaction while Ag shows the strongest bonding with PBT due to the covalent bonding between O and Ag.

Chapter 3 described the different possibilities of modifying the electronic and magnetic properties of transition

metal-doped single-walled carbon nanotubes (SWNT). The adsorption of Fe and Co on SWNT transformed the system into a diamond ring-like structure. These formations were caused by the weakening of the C-C bonds as Fe was adsorbed on the nanotube wall. In addition, the number of bands crossing the Fermi level was increased by the adsorption of Fe and Co atoms on the SWNT. The stable structures of SWNTs and Fe-filled SWNTs on Ni(111) and Cu(111) were also examined. The structure and magnetic moment of SWNT-encapsulating Fe wire adsorbed on Ni(111) were found to be strongly dependent on the adsorption site and the position of the Fe wire in the SWNT. The SWNTs transformed themselves from tube to arch when Fe wire was placed near the metal surfaces and Fe became ferromagnetic due to the weakening of C-C bond of the carbon nanotube by the Fe wire and the metal surface. The Fe wire and the metal surface could act as catalysts for breaking the C-C bonds. Furthermore, the atoms at the upper portion of the carbon nanotube were observed to be non-metallic and those near the surface become metallic when Fe-filled SWNT was placed on metal surfaces.

Lastly on Chapter 4, an effective model was provided for the interaction of gas molecules on metal oxide surface in order to predict beforehand gas combinations that would give favorable reaction to the NiO thin film in the reactive ion etching (RIE) process. The total energies for the molecule-interaction on metal oxide surface were calculated. One-layered model and three-layered models were compared and observed that the three layers gave lower energy results. Moreover, the use of a radical O atom instead of the molecular oxygen gave more favorable results.

## 論文審査の結果の要旨

電子デバイス内の物質界面で起こる様々な反応の理解は、今後のナノスケールデバイス開発の重要な基盤になる。本論文では物質間の結合形成および切断のメカニズムの解明を目的とし、密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算を援用し、全エネルギー、安定構造、電荷密度分布、局所状態密度、バンド構造を種々の物質間の界面に関して求めている。本論文における主な成果を要約すると以下のとおりである。

(1)ポリブチレンテレフタレート (PBT) の金属原子 (Ag, Al, Ti, Au) との結合状態及び Al 表面での吸着状態を調べている。その結果、主に、PBT 内酸素の s 及び p 電子と金属原子との相互作用によって、結合状態が形成されることを見出している。この結合の強さは、PBT と金属原子間に形成される共有結合の強さに依存しており、PBT-Ag 間の結合が最も強く、PBT-Au 間の結合が最も弱くなることを指摘している。また、PBT は垂直配向で Al 表面上に吸着する状態が最も安定であることを見出している。

(2)遷移金属をドーブした単層カーボンナノチューブ (SWNT) の電氣的、磁氣的性質について調べている。その結果、Fe や Co が SWNT に吸着することにより、SWNT が変形しダイヤモンドリング状の構造を形成することを見出している。これは、Fe が SWNT 側壁に吸着することにより炭素間の結合が弱くなるためであることを指摘している。さらに、Fe や Co の吸着により、フェルミレベルと交差するバンドの数が増えることから、電気伝導度が増加することを示している。

(3)Ni(111)、Cu(111) 面上の SWNT 及び Fe ワイヤ内包 SWNT の吸着構造、電氣的、磁氣的性質について調べている。その結果、吸着構造および磁気モーメントは吸着サイトや内包されている Fe の位置に大きく依存すること、特に、内包されている Fe ワイヤが金属表面付近に位置するように Fe 内包 SWNT を金属表面に吸着させると、SWNT がチューブ状からアーチ状に変形し、Fe 原子間に強磁性状態が発現することを見出している。これは、Fe ワイヤが金属表面に吸着することにより、炭素間の結合が弱くなるためであることを指摘している。さらに、Fe 内包 SWNT の金属表面付近の炭素原子は金属的となるが、金属表面付近にない炭素原子は非金属的となることを示している。

(4)抵抗変化ランダムアクセスメモリ (RRAM) の材料である NiO 薄膜の反応性イオンエッチング (RIE) に有効な反応ガスの組合せについて調べている。その結果、NH<sub>3</sub> や CH<sub>4</sub> など水素をベースとするガス種を含む組合せが有効であることを見出している。これは、水素をベースとするガスが RIE 中間状態の活性化障壁を低下させ、RIE 終状態

で揮発性の Ni カルボニル、 $\text{NO}_2$  や  $\text{H}_2\text{O}$  を生成するためであることを指摘している。さらに、活性酸素を含む反応ガスの組合せが酸素分子を含む組合せに比べ RIE 中間状態の活性化障壁をさらに低下させるため、RIE に有効であることを見出している。

以上のように、本論文は密度汎関数理論に基づく第一原理電子状態計算を援用し、電子デバイス内の種々の物質界面の電子状態を理論的に研究したもので、基礎的な面のみならず、応用の面でも有益な知見を得ており、応用物理学、特に物性物理学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。