

アンチモン被覆 GaP 表面への窒素原子取り込み様式の理論的解析

Theoretical analysis of the mode of incorporation of nitrogen into antimony-coated GaP surfaces.

大根 駿、彦坂 昌志、若原 昭浩、山根 啓輔 (豊橋技科大)

S. One, M. Hikosaka, A. Wakahara, K. Yamane (Toyohashi Tech.)

E-mail: one.shun.gn@tut.jp, yamane.keisuke.ue@tut.jp

III-V 族希薄窒化物混晶中に添加したアンチモン(Sb)は表面偏析し、この現象が母材結晶の発光特性や平坦性の改善につながる事が分かっている[1]。我々はこれまでに、Sb 添加 GaPN 混晶では無添加の場合に比べ、PL 強度の改善、二次元成長の促進、窒素取り込み効率の向上が生じることを実験的に明らかにした[2]。しかしながら、Sb 被覆 GaP 表面における成長様式に関しては知見がほとんど得られていない。本稿では、第一原理計算により Sb 被覆 GaP 表面への窒素の取り込み形態を再現し、結晶性向上メカニズムを検討した。

プログラムコードには Dmol3 を使用し、交換相関汎関数は GGA-PBE を、k 点メッシュは Monkhorst-Pack 法より $2 \times 2 \times 1$ とした。計算モデルはセルサイズを $2 \times 2 \times 1$ (40 原子) の GaP を用意し、Ga 表面に Sb を 1 原子層被覆した構造とした。表面を再現するための真空層として Sb 上に $30 \text{ \AA}$ 設け、用意したモデルに対し構造最適化を行った。窒素原子が結晶表面に取り込まれる様子をシミュレーションするため、窒素原子を真空側から表面に近づけて Sb 原子と入れ替わる過程について LST/QST 法による遷移状態解析を行った。

図 1 に真空側から N 原子が Sb 被覆 GaP 表面に接近して取り込まれる際の構造および形成エネルギーの変化を示す。表面に到達した N 原子は Sb と入れ替わることで、形成エネルギーが 0.3 eV 低下する (図 1(b))。その後、Sb が脱離する過程で形成エネルギーが高くなる事が分かった。ここでは示していないが、真空側から P 原子が同様に接近した際も、Sb-P の置換が起こり同様のエネルギー変化を示すことが分かった。したがって、窒素や P 原子と入れ替わった Sb は表面に残留した方がエネルギー的に優位であると考えられる。このことは、実験的に Sb が表面偏析する事実と矛盾しない。また、表面に Sb が残留することにより N-N 対の形成を抑制できている可能性が示唆される。以上の結果から、Sb サーファクタント媒介成長における表面反応過程に関する知見を得ることができた。

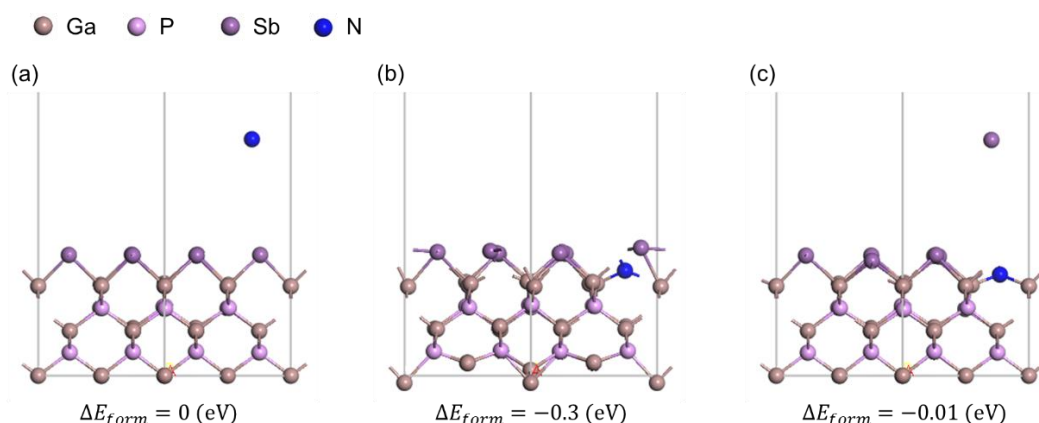


図 1 N 原子が Sb 被覆 GaP 表面に接近した場合のエネルギー状態(a)N 接近前,(b)N-Sb 置換,(c)Sb 脱離. ΔE_{form} は始状態を基準にした時の形成エネルギーの変化、負符号は始状態より安定な状態を示す

【謝辞】本研究の一部は日本板硝子工学材料助成会および村田学術振興財団の助成のもとに行われた。

[1] N. Miyashita et al., Solar Energy Materials & Solar Cells 111 (2013) 127.[2] 彦坂昌志他, 第 83 回秋応物, 20p-A307-7, (2022).