

GGA+U 法による $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ 材料物性の精密予測

A precise prediction of material properties of $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ by using the GGA+U method

¹名大院工, ²学振特別研究員(PD), ³学振特別研究員(DC), ⁴名大エコトピア

○長江祐樹¹, 黒澤昌志^{1,2}, 加藤元太¹, 柴山茂久^{1,3}, 中塚理¹, 財満鎮明^{1,4}

¹Graduate School of Engineering, Nagoya University, ²JSPS Research Fellow (PD),

³JSPS Research Fellow (DC), ⁴EcoTopia Science Institute, Nagoya University

○Y. Nagae¹, M. Kurosawa^{1,2}, M. Kato¹, S. Shibayama^{1,3}, O. Nakatsuka¹, and S. Zaima^{1,4}

E-mail: ynagae@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp, kurosawa@alice.xtal.nagoya-u.ac.jp

〔はじめに〕 光通信帯域(1.5 μm)に合致する光学材料として $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ 直接遷移型半導体の創生に大きな期待が寄せられている。最近我々は、Sn 固溶限(0.1%)をはるかに超える $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ (Sn 組成 $x>20\%$) の多結晶および単結晶成長に成功し、その光学吸収特性を実験的に明らかにした[1]。デバイス設計に向けて理論計算の助けが必須である。経験的擬ポテンシャル法[2]や密度汎関数法[3]による $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ バンド構造計算が 10 年近く前になされたものの、高 Sn 組成化の実現に懐疑的だったこともあり、 $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ の物性には不明な点が多い。実験・理論の両輪による $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ 材料物性の解明を目指した研究が重要な時期に来ている。本研究では、精密なバンド構造の予測が可能な第一原理計算シミュレーション手法として、generalized gradient approximation + U value (GGA+U) 法を導入し、 $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ の各種物性値に Sn 組成が与える影響について、系統的な理論予測を試みた。

〔計算手法とモデル〕 全電子を考慮した第一原理計算 (projector augmented wave method) を行い、本計算に必要な交換相関エネルギーには GGA (PBE 関数) [5] を採用した。精密な計算を行うために、Si および Sn の s 電子に +U の Hubbard 補正項を導入し、Si の間接バンドギャップおよび $\alpha\text{-Sn}$ の直接バンドギャップをそれぞれ 1.161 eV および 0 eV に補正した。本研究では、ユニットセル内に 8 つの Si または Sn 原子を配置したダイヤモンド構造 (Fig. 1) に対して計算を行った。

〔結果および議論〕 各 Sn 組成の $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ に対して計算された格子定数を Fig. 2 にまとめた。図中には、実際に我々が作製した多結晶 $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ について、格子置換位置 Sn 組成および格子定数をそれぞれ顕微ラマン分光法および X 線回折法により評価した結果も示した。計算結果が実験値より大きく (例えば、Si では 1.5%、 $\alpha\text{-Sn}$ では 2.6%) 見積もられるのは、GGA 法を用いると格子定数を過大評価する傾向にあるため[6]と考えている。よって、以降では格子定数のボーイングについて議論する。 $a_{\text{SiSn}} = a_{\text{Si}}(1-x) + a_{\text{Sn}}x - bx(1-x)$ のフィッティング式を用いて、計算および実験値に対するボーイングパラメータ b を求めた結果、それぞれ、 $b_{\text{calc.}} = -0.47 \text{ \AA}$, $b_{\text{exp.}} = -0.66 \text{ \AA}$ が得られた。計算結果には多少ばらつきがあるものの、両者のオーダーは一致した。これらの値は、 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ や $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ のボーイングパラメータ ($\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$: $-0.026 \text{ \AA}$ [7], $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$: $+0.166 \text{ \AA}$ [8]) の絶対値に比べ、約 3~18 倍大きい。これは、Si と Sn 間に存在する大きな原子半径差に起因するものと推測され、妥当な結果と判断できる。講演当日は、バンド構造計算等の結果もあわせて報告したい。

〔参考文献〕 [1] M. Kurosawa *et al.*, *submitted*. [2] J. L. Corkill *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 10304 (1992). [3] J. Tolle *et al.*, Appl. Phys. Lett. **89**, 231924 (2006). [4] M. J. Han *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 045110 (2006). [5] P. E. Blöchl, Phys. Rev. B **50**, 17953 (1994). [6] J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996); **78**, 1396 (1997). [7] S. Q. Wang *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **15**, L197 (2003). [8] J. P. Dismukes *et al.*, J. Appl. Phys. **35**, 2899 (1964). [9] A. V. G. Chizmeshya *et al.*, Chem. Mater. **15**, 2511 (2003).

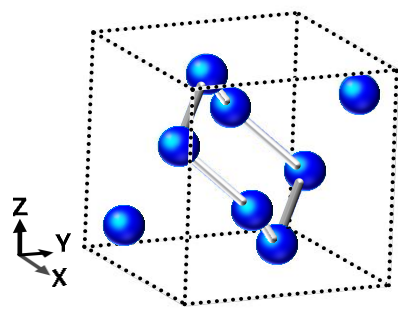


Fig. 1 Schematic illustration of the unit cell (diamond structure) using in this calculation.

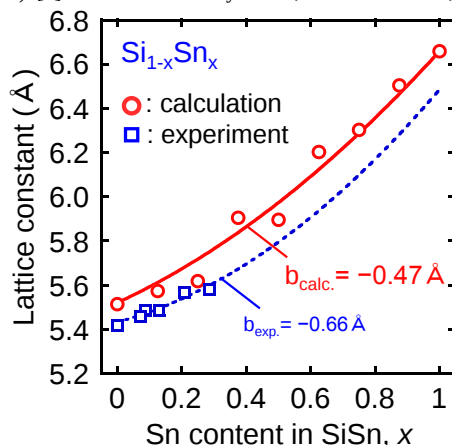


Fig. 2 The lattice constant of $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ as a function of the Sn content. The experimental results for the polycrystalline $\text{Si}_{1-x}\text{Sn}_x$ layers (square symbol) and the calculated values (circle symbol) are summarized.