

3 元系亜鉛窒化物半導体 YZn_3N_3 の 第一原理計算による物性予測とスパッタリング薄膜の作製

First-Principles Study and Sputtering Deposition of Ternary Zinc Nitride YZn_3N_3

パナソニック¹, 東工大², [○]菊地 諒介^{1,2}, 中村 透¹, 藏淵 孝浩¹,
金子 泰¹, 熊谷 悠², 大場 史康²

Panasonic Corp.¹, Tokyo Tech², [○]Ryosuke Kikuchi^{1,2}, Toru Nakamura¹, Takahiro Kurabuchi¹,
Yasushi Kaneko¹, Yu Kumagai², and Fumiyasu Oba²

E-mail: kikuchi.ryosuke@jp.panasonic.com

【序論】

無毒かつ豊富に存在する元素で構成された 3 元系亜鉛窒化物は、優れた半導体特性を有する半導体として注目を集めている。中でも 3 族元素との複合窒化物である LaZn_3N_3 は直接遷移のバンド構造と低い有効質量を有することが理論予測されている¹。一方、同じく 3 族元素との複合窒化物である YZn_3N_3 は、既知の窒化物の結晶構造を仮定した場合、不安定であるとされてきた。本研究では、第一原理計算により、 YZn_3N_3 の最安定の結晶構造を、窒化物以外の結晶構造を含めて網羅的に探索し、その半導体物性を明らかにした。さらにスパッタリング法により YZn_3N_3 薄膜を作製し、その結晶構造を調べた。

【計算および実験方法】

第一原理計算は VASP コード² に実装された projector augmented-wave 法を用いて行った³。 YZn_3N_3 の最安定結晶構造の探索には PBEsol 汎関数⁴に Zn-d 軌道への $U_{\text{eff}} = 5$ eV のオンサイトのクーロン補正⁵を加えた PBEsol+U 法を、状態密度の計算には HSE06 型のハイブリッド汎関数⁶を使用した。成膜には Y と Zn による共スパッタリング法を用いた。Y および Zn ターゲットに投入した RF 電力はともに 30 W とした。基板は無アルカリガラスを用い、基板温度を 200°C とした。チャンバーには窒素 (95%) と水素 (5%) の混合ガスを 25 sccm 導入し、スパッタ中の圧力は 2 Pa に保持した。試料中の結晶相を斜入射 X 線回折 (GIXRD) によって解析した。

【結果と考察】

第一原理計算による結晶構造のスクリーニングにより、 YZn_3N_3 は ScAl_3C_3 型構造 (空間群: $P6_3/mmc$) が最安定であることを見出した。さらにこの構造では、伝導帯下端と価電子帯上端が Γ 点に存在する直接遷移型のバンド構造を有し、そのバンドギャップは 1.80 eV であることがわかった。各元素の部分状態密度を図 1 に示す。 YZn_3N_3 の価電子帯は Zn-3d と N-2p で構成されていることがわかる。既報の亜鉛窒化物である CaZn_2N_2 と同様に、価電子帯上端は Zn-3d と N-2p の反結合性軌道で構成されていることを示唆している¹。このようなバンド構造は、点欠陥などにより生じるダングリングボンドが形成する欠陥準位を浅くする、あるいは価電子帯内部に生成することが期待できる⁷。

次に共スパッタリング法による成膜を検討した。得られた薄膜の、GIXRD 測定結果を図 2 に示す。第一原理計算で最適化した結晶構造からシミュレーションした ScAl_3C_3 型 YZn_3N_3 のスペクトルに合致したピークのみが得られ、 YZn_3N_3 膜の単相の成膜に成功したことを確認した。

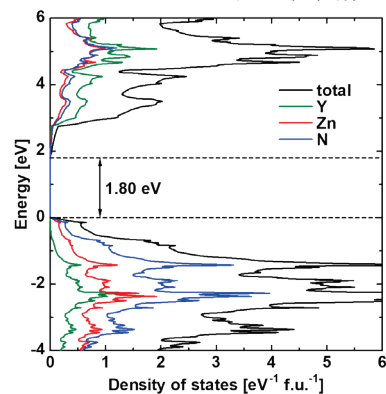


Fig. 1. Total and site-projected densities of states of YZn_3N_3 calculated from first principles.

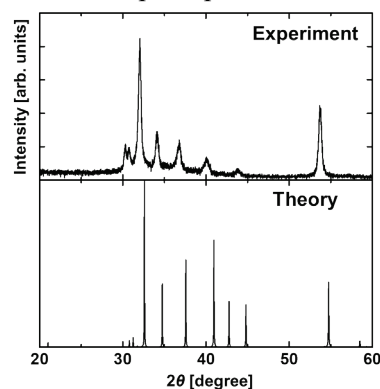


Fig. 2. GIXRD profile of a thin film deposited by co-sputtering of Y and Zn targets and a simulated pattern of YZn_3N_3 .

- 1) Y. Hinuma *et al.*, *Nat. Commun.*, **7**, 11962 (2016).
- 2) G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B*, **54**, 11169 (1996).
- 3) P. E. Broch, *Phys. Rev. B*, **50**, 17953 (1994).
- 4) J. P. Perdew *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 136406 (2008).
- 5) V. I. Anisimov *et al.*, *Phys. Rev. B*, **44**, 943 (1991).
- 6) J. Heyd and G. E. Scuseria, *J. Chem. Phys.*, **118**, 8207 (2003).
- 7) F. Oba and Y. Kumagai, *Appl. Phys. Express*, **11**, 060101 (2018).