

## 欠陥を含んだ GaN の発光メカニズムの理論的解明

(京大院工) 木村弘太郎, 浅野洋介, Pawel Szarek, 土井謙太郎, 立花明知\*

\*akitomo@scl.kyoto-u.ac.jp

### [序]

近年, GaNをはじめとする 族窒化物半導体が高輝度短波長レーザーダイオードなどの光デバイスに利用されていることから, その研究や開発が盛んに行われている. GaN結晶をサファイアなどの異種材料の基板上に成長させるため, 格子不整合が生じ, GaNの結晶中には空孔や転位などの多くの欠陥が含まれている. 従来から良く知られているGaAs系のLEDでは欠陥密度が  $10^3\text{cm}^{-2}$ を越えると極端に発光効率が落ちるが, GaNでは欠陥密度が  $10^9\text{cm}^{-2}$ であっても高い発光効率を示す. [1] しかしこれほど多くの欠陥を含んでいるにもかかわらずなぜ発光効率が高いのか, その理由は解明されていない. 本研究では, Ga空孔に着目し, GaNの結晶構造をもつクラスターモデルについて配置間相互作用に基づく第一原理電子状態計算を行ない, 分子軌道や遷移確率などから, 欠陥の電子状態と発光メカニズムの相関について考察を行った.

### [計算方法およびモデルの説明]

本研究では GaN の単結晶構造および Ga 空孔を含む構造のクラスターモデルについて Gaussian03 プログラム[2]を用いて分子軌道法による電子状態計算を行った. 基底状態における電子状態の変分計算には Hartree-Fock 法(HF 法)を用い, 励起状態の計算には配置間相互作用を用いた. N 原子には 6-31G\*基底関数を用いた全電子計算を行った. また Ga 原子には価電子に 6-31G\*基底関数を採用し, 内殻の電子を擬ポテンシャルに置き換えて計算を行った.

今回作成したモデルを Fig. 1 に示す. 中心部に Ga 原子を 10 個, N 原子を 10 個置き, その周りに点電荷を配置した. 結晶中で Ga 原子が配置されているサイトには正の電荷を置き, N 原子が配置されているサイトには負の電荷を置いた. 点電荷の絶対値が 1.4 のとき原子間の Mulliken 電荷の差が最も小さくなったことから, この値を採用した. 欠陥を含んだモデルの構造は QM/MM 法を用いて構造最適化することで決定した. 最適化された構造の MM 領域の原子を点電荷に置き換え, 欠陥を含むモデルの電子状態の計算を行った.

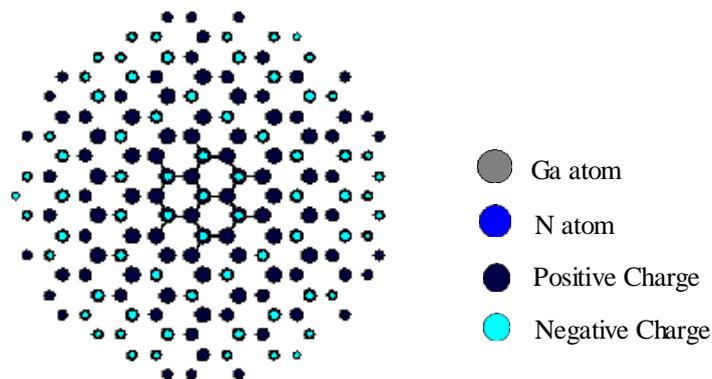


Fig. 1. GaN の結晶構造をもつクラスターモデル.

半導体では電子と正孔が再結合することで光が放射されることから, この現象を理解するためには電子と正孔といった微視的な観点から考察することが重要であると考え. そこで注目

する系において、量子エネルギー密度解析[3]を行ない、空孔が光学遷移に与える影響を考察した。この計算を行うにあたり、本研究室で作製した Molecular Regional DFT プログラムパッケージ[4]を使用した。

#### 【結果】

欠陥を含まないモデルにおける電子と正孔の再結合により放出されるエネルギーは 4.32eV となり遷移確率の値は 0.2268 になった。HF 法では励起エネルギーを過大評価するため、実験値の 3.39eV よりも高い値になったと考えられる。また欠陥を含むモデルの遷移確率を求めた結果、欠陥を含まない場合よりも確率は小さくなるものの、3.95eV, 4.22eV, 4.39eV 付近に発光ピークをもち、遷移確率がそれぞれ 0.0368, 0.0383, 0.0309 になることがわかった。3.95eV および 4.22eV 近傍に発光ピークをもつのは、Ga-N 結合が切れたことでダングリングボンドができ、その準位がバンドギャップ内に現れたことで、バンドギャップが狭まったためである。また、4.39eV 近傍の発光ピークは欠陥を含まないときに見られる発光ピークに対応することがわかった。Fig. 2 は今回用いたモデルの電子ストレステンソル密度の最大固有値を示した図である。空孔の位置に負の固有値が見られるが、これは金属原子近傍に見られる電子の特徴に似ており、欠陥の存在による電子の振る舞いについては興味深い点である。詳細は当日発表する。

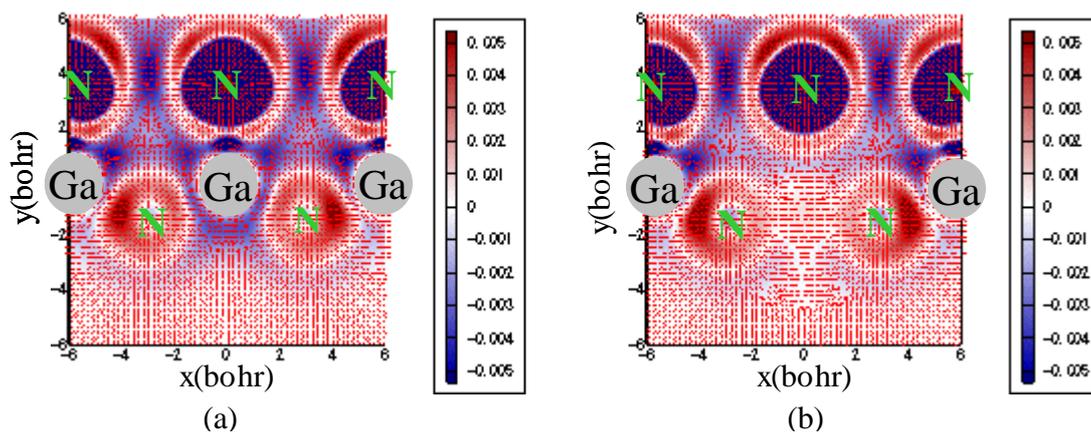


Fig. 2. クラスタモデルの電子ストレステンソル密度. (a)欠陥なしのクラスタモデル, (b)欠陥ありのクラスタモデル.

- [1] M. Kamp, *Optical and Quantum Electronics*. **32**, 227(2000).
- [2] M.J. Frisch et al., *Gaussian 03, Revision B.05*, Gaussian Inc., Pittsburgh, PA, 2003.
- [3] A. Tachibana, *J. Chem. Phys.* **115**, 3497 (2001).
- [4] K. Nakamura, K. Doi, A. Tachibana, *Computer code Molecular Regional DFT program package, ver 1* (Tachibana Lab Kyoto University, Kyoto, 2004).