

3P129

閃亜鉛鋅型 GaN の光吸収特性における電子-フォノン相互作用の影響

(東大院・工¹, Institut Laue Langevin², Istituto di Struttura della Materia of the National Research Council³, European Theoretical Spectroscopy Facilities (ETSF)⁴)

○河合 宏樹¹, 山下 晃一¹, Cannuccia Elena², Marini Andrea^{3, 4}

The effect of electron-phonon interaction on the optical properties of zinc-blende GaN

(School of Engineering, The University of Tokyo¹, Institut Laue Langevin², Istituto di Struttura della Materia of the National Research Council³, European Theoretical Spectroscopy Facilities (ETSF)⁴)

○Hiroki Kawai¹, Koichi Yamashita¹, Elena Cannuccia², Andrea Marini^{3, 4}

【序】半導体デバイス材料として広く使われている窒化ガリウム GaN は、最安定構造のウルツ鋅型の他、準安定構造として閃亜鉛鋅型をとる。閃亜鉛鋅型 GaN (*zb*-GaN) は、ウルツ鋅型とは異なり内部電場を持たないことから、ヘテロ構造や超格子の設計においてより望ましい材料であるとされている[1]。近年、格子不整合が小さく高純度な *zb*-GaN の合成が可能になるに伴い、その物性の詳細な理解に注目が集まっている。

実験的に *zb*-GaN の誘電関数及びバンドギャップが調べられている一方で、第一原理計算による理論的な解析には、精度の面で未だ問題が残されている。Carvalho らは、LDA や GGA よりも精確な格子定数を与える AM05 交換相関汎関数を用いた DFT 計算によって構造最適化を行い、その構造について、HSE 汎関数による DFT 計算及び GW 近似を用いてバンドギャップを計算した[2]。しかし、その結果は 3.427 eV と、実験値の 3.295 eV ($T=10$ K) [3]に比べてやや過大評価されており、このような差が生じる原因については未だ議論の余地が残されている。

通常、バンド構造の計算は Born-Oppenheimer 近似、すなわち原子核は固定されているという描像のもとで行われる。しかし、多体摂動論に基づき電子-フォノン相互作用によるバンドエネルギーの補正を考慮した場合、例えば絶対零度であろうと、その零点振動がバンド構造にもたらす影響は無視できないことが、ダイヤモンドやポリアセチレンなどの系において報告されている[4]。そこで、本研究では *zb*-GaN における電子-フォノン相互作用の影響を調べ、実験結果との詳細な比較を行うこととした。

【理論】電子-フォノン相互作用を考慮するため、Born-Oppenheimer 近似における電子のハミルトニアンを原子核座標について Taylor 展開した、以下のハミルトニアンを考える。

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1 + \hat{H}_2 \quad (1)$$

\hat{H}_0 は、原子核が最安定点にあるときのハミルトニアンであり、 \hat{H}_1 及び \hat{H}_2 は、それぞれ原子核座標に対する一次及び二次微分の項である。 \hat{H}_1 及び \hat{H}_2 のそれぞれに対する最低次の自己エネルギーは、Fan term 及び Debye-Waller (DW) term と呼ばれるもので、それぞれ以下のように書き下される。

$$\Sigma_{nk}^{Fan}(\omega, T) = \sum_{n'q\lambda} \frac{|g_{nn'k}^{q\lambda}|^2}{N_q} \left[\frac{N_{q\lambda}(T) + 1 - f_{n'k-q}}{\omega - \varepsilon_{n'k-q} - \omega_{q\lambda} - i0^+} + \frac{N_{q\lambda}(T) + f_{n'k-q}}{\omega - \varepsilon_{n'k-q} + \omega_{q\lambda} - i0^+} \right] \quad (2)$$

$$\Sigma_{nk}^{DW}(T) = \frac{1}{N_q} \sum_{q\lambda} \Lambda_{nnk}^{q\lambda, q-\lambda} (2N_{q\lambda}(T) + 1) \quad (3)$$

q, λ はそれぞれフォノンの運動量、モード番号を表し、 $g_{nn'k}^{q\lambda}$ 及び $\Lambda_{nnk}^{q\lambda, q-\lambda}$ は一次及び二次の電子-フォノンカップリング行列である。 $N_{q\lambda}(T)$ は Bose-Einstein 分布関数であり、この項によって温度依存性が導入される。

準粒子の描像に基づけば、無摂動のバンドエネルギー ε_{nk} は Dyson 方程式を通して以下のように補正される。

$$E_{nk}(T) = \varepsilon_{nk} + Z_{nk}(T) [\Sigma_{nk}^{Fan}(\varepsilon_{nk}, T) + \Sigma_{nk}^{DW}(T)] \quad (4)$$

ここで、 $Z_{nk}(T) = \left(1 - \frac{\partial \text{Re} \Sigma_{nk}^{Fan}(\omega, T)}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\varepsilon_{nk}} \right)^{-1}$ は renormalization factor と呼ばれ、自己エネルギーが動的であることに由来する項である。自己エネルギーを静的であるとする近似 $Z_{nk}(T) = 1$ は、On Mass Shell (OMS) 近似と呼ばれる。式(2)に示した Fan term は複素数であることから、この補正は実部がバンドのエネルギーシフトを与えるのみではなく、虚部としてバンドの寿命の逆数を与える。この寿命は、吸収スペクトル計算の結果に大きな寄与をもたらすものである。

【結果】 計算及び実験による、*zb*-GaN における対称性の高い k 点 (Γ, L, X) におけるエネルギーギャップを表 1 に示す。計算結果は、LDA、LDA+G₀W₀、HSE+G₀W₀、及び HSE+G₀W₀ の結果に OMS 近似による電子-フォノン相互作用の補正項を加えたものを示す。LDA 及び LDA+G₀W₀ は、全ての k 点においてギャップを過小評価している一方で、HSE+G₀W₀ は先述の通り過大評価していることが分かる。しかし、電子-フォノン相互作用による補正を HSE+G₀W₀ の結果に加えることで、実験値との一致は大きく改善されている。零点振動によるギャップの補正は 0.1 eV 以上であり、実験値との厳密な比較を行うためには無視できないものであることが分かる。当日の発表においては、電子-フォノン相互作用の効果を含めたバンド構造に対して

表 1 *zb*-GaN のエネルギーギャップ(eV)

	Γ	L	X
LDA	2.231	5.952	6.034
LDA+G ₀ W ₀	3.239	7.117	7.105
HSE+G ₀ W ₀ [2]	3.427	7.707	7.755
HSE+G ₀ W ₀ +OMS	3.300	7.517	7.624
Exp ($T=10K$)[3]	3.295	7.33	7.62

Bethe-Salpeter equation (BSE) を解いて求めた複素誘電関数から、電子-フォノン相互作用が吸収スペクトルにもたらす影響について示す。また、その温度依存性についても議論する予定である。

【参考文献】 [1] C. Mietze *et al. Phys. Rev. B* **83**, 195301 (2011) [2] L.C.de Carvalho *et al. Phys. Rev. B* **84**, 195105 (2011) [3] M. Feneberg *et al. Phys. Rev. B* **85**, 155207 (2012) [4] E. Cannuccia and A. Marini, *Phys. Rev. Lett* **107**, 255501 (2011)