

1P118

## 量子化学に基づく SiC および SiGe ナノシートの構造と反応性の研究

(横浜国大院・工)○平見拓哉、高橋遼太郎、佐藤浩太

A quantum chemical study on the structure and reactivity of SiC and SiGe nano sheets

(Yokohama National University)○Takuya Hiram, Ryotaro Takahashi, Kota sato

【序】2004年にグラフェンというC原子が単層のハニカム状のシートになっている構造が発見され、その電子的特性から近年注目されている。本研究室では過去にグラフェンのC原子をSi原子に置き換えたシリセンとGe原子に置き換えたゲルマネンという物質の理論研究を行っている。また、B原子とP原子が1対1に交互に結合しているBPについて検討している。そこで、今回の研究ではSi原子とC原子が1対1で交互に結合しているSiCおよびSi原子とGe原子が1対1で交互に結合しているSiGeの構造と反応性について量子計算で解析をした。

【方法】コロネンサイズのSiGeとSiCの安定構造を計算によって求めた。グラフェンは完全な平面構造をもつが、シリセンの場合はケイ素同士の共有結合がわずかに屈曲した構造が熱力学的に安定となるため、初期構造は平面構造の状態と屈曲させた状態の2つの構造で、構造最適化と振動数解析を実行した。次に、SiGeの安定構造に、上から種々の原子を降らせた場合の反応性について計算をした。またSiGeの安定構造を出発点としてSiとGeの比率やSiとGeの配置を変えてより平面に近いSiGeナノシートの設計を目指した。計算にはGaussian03を用い、近似法は密度汎関数法(DFT)、汎関数としてB3LYP、基底関数として分子軌道の異方性を考慮するために分極関数(d)を入れた6-31G(d)を用いた。

【結果】コロネンサイズのSiCとSiGeの安定構造の結果を図1と表1に示す。SiCの構造はグラフェンのような完全な平面構造で安定化し、SiGeの構造はお碗の形に近い安定構造をとり平面構造で安定化しなかった。次に、SiGeの安定構造に種々の原子を吸着させる箇所を図3に吸着の結果を表2に示した。種々の原子のSiGeへの吸着は、高い反応性を示した。またSiとGeの比率や配置を変えて計算した結果、SiとGeの比が2対3の構造とSiとGeの比が3対2の構造のときシリセンに近いジグザグ構造をとる構造が存在した。(図2)

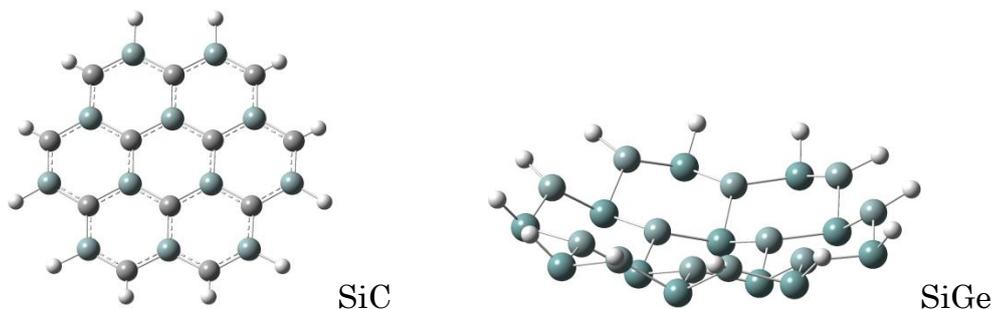


図1. SiC と SiGe の安定構造

表 1. SiC と SiGe の安定構造のデータ

	SiC	SiGe
HOMOLUMO 差[ev]	3.510	2.068
振動数	実数	実数

表 2. 種々の原子を Si[1]と Ge[2]に吸着した構造のデータ

	P 吸着[1]	P 吸着[2]	B 吸着[1]	B 吸着[2]	N 吸着[1]	N 吸着[2]
$\Delta E$ [ev]	-5.61	-3.16	-5.61	-10.23	-6.53	-4.08
振動数	実数	実数	実数	実数	実数	実数



図 2. Si と Ge の比率や配置を変えた SiGe の安定構造

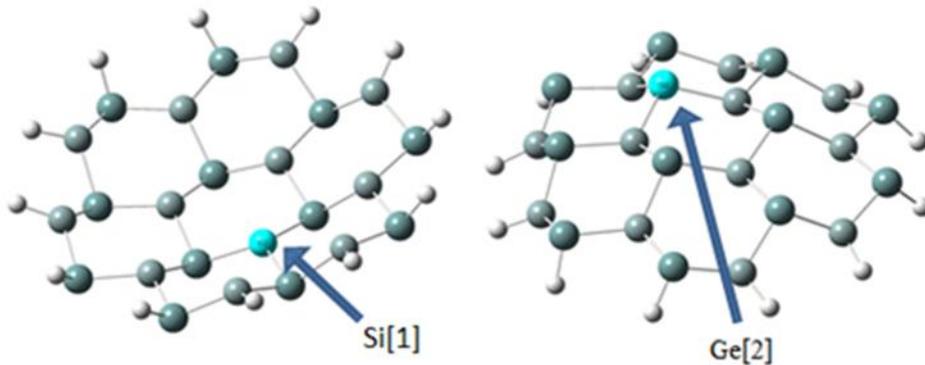


図 3. SiGe への種々の原子の吸着箇所

【考察】安定構造について、表 1 より振動数が実数であることから、図 1 のような構造で安定に存在できるといえる。SiC は炭素が  $sp^2$  性を持ちやすいため完全に平面になったと考えられる。一方、シリセンとお椀型の SiGe の HOMO と LUMO の図を比較すると、シリセンに比べて SiGe は局在化していることがわかり、そのために SiGe はシリセンのような  $sp^2$  性の強い平面に近いジグザグ構造から離れて、 $sp^3$  性の強いお椀型構造をとったと考えられる。B を Ge に吸着した場合、 $\Delta E$  が大きく、構造が安定した原因は構造が大きく崩れたため  $sp^3$  性がさらに強くなり安定性が高くなったと考えられる。図 2 の二つの構造は全体で電荷の偏りが少なく双極子モーメントがほぼ 0 になっておりシリセンのような平面に近いジグザグ構造をとっていることがわかった。また Si 原子と Ge 原子が 1 対 1 で交互に結合しているお椀型構造の SiGe は反応性が高く、Si と Ge の比が 2 対 3 などの構造の方が安定な構造ではないかと考えられる。