

TDDFT によるフッ素終端した窒化ガリウムにおける ホールダイナミクスの解明

屋山 巴 (Tomoe YAYAMA)

工学院大学 先進工学部
応用物理学科 宇宙理工学専攻

本研究の背景と目的：GaN中の窒素欠陥に対するフッ素終端とp型化の可能性

窒化ガリウム(GaN)は宇宙用機器への活用も期待される有力な半導体であるが、その実用化においてp型化が重要な課題である。

GaNにおいて窒素(N)空孔が生じやすいが、N空孔はホールを補償することがGaNのp型化が困難な要因の1つとなっている。

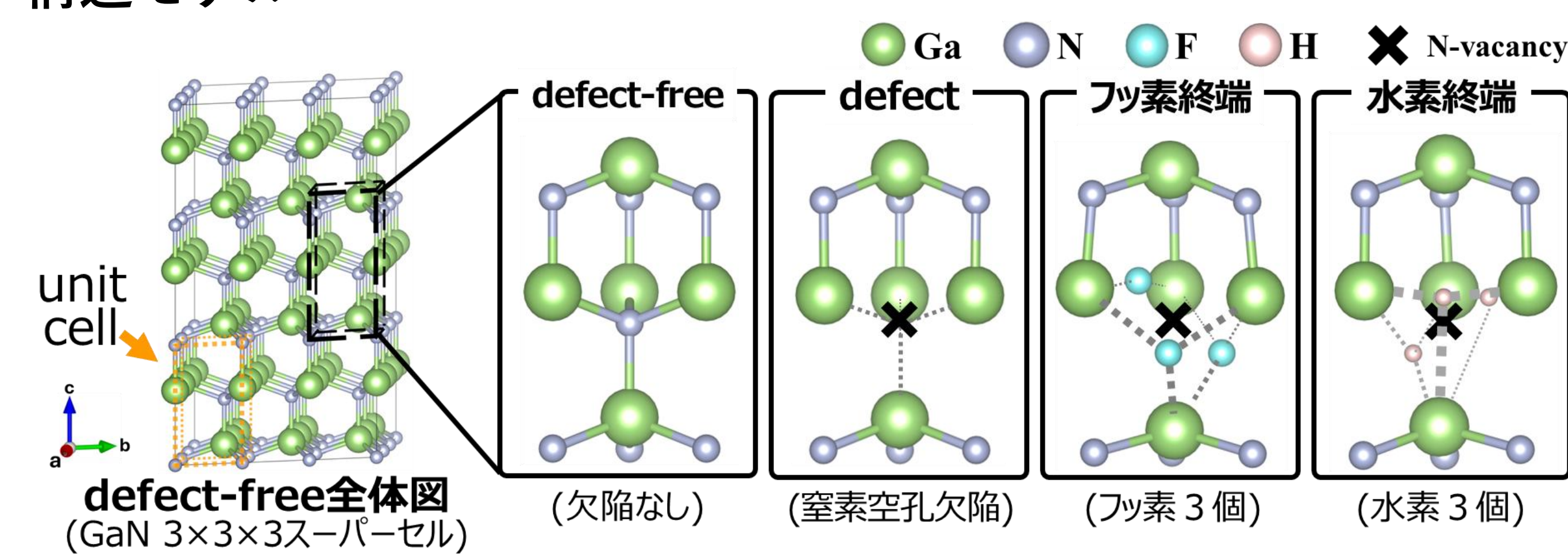
これに対し、本研究グループでは、フッ素(F)により窒素空孔により生じたダングリングボンドを終端することで著しく電子状態を改善できることを報告している。(Y. Fujishiro, TY, et al., J. Appl. Phys. 139, 085703 (2026).)

本研究では、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)の枠組みの下で、F終端により電子状態が改善したGaNに対しMgドープによってホールを生じさせ、生じたホールの時間発展挙動を調べる。以下に示すこれまでの関連研究を効果的に組み合わせることにより、GaNのp型化に対する有力な知見が得られる。複数の不純物を有する系では大規模な計算資源を要するため、東北大学サイバーサイエンスセンターの大規模ベクトル型計算機(AOBA-S)の使用により初めて実現可能となる。

これまでの関連研究：窒素欠陥状態に対するフッ素終端の有効性

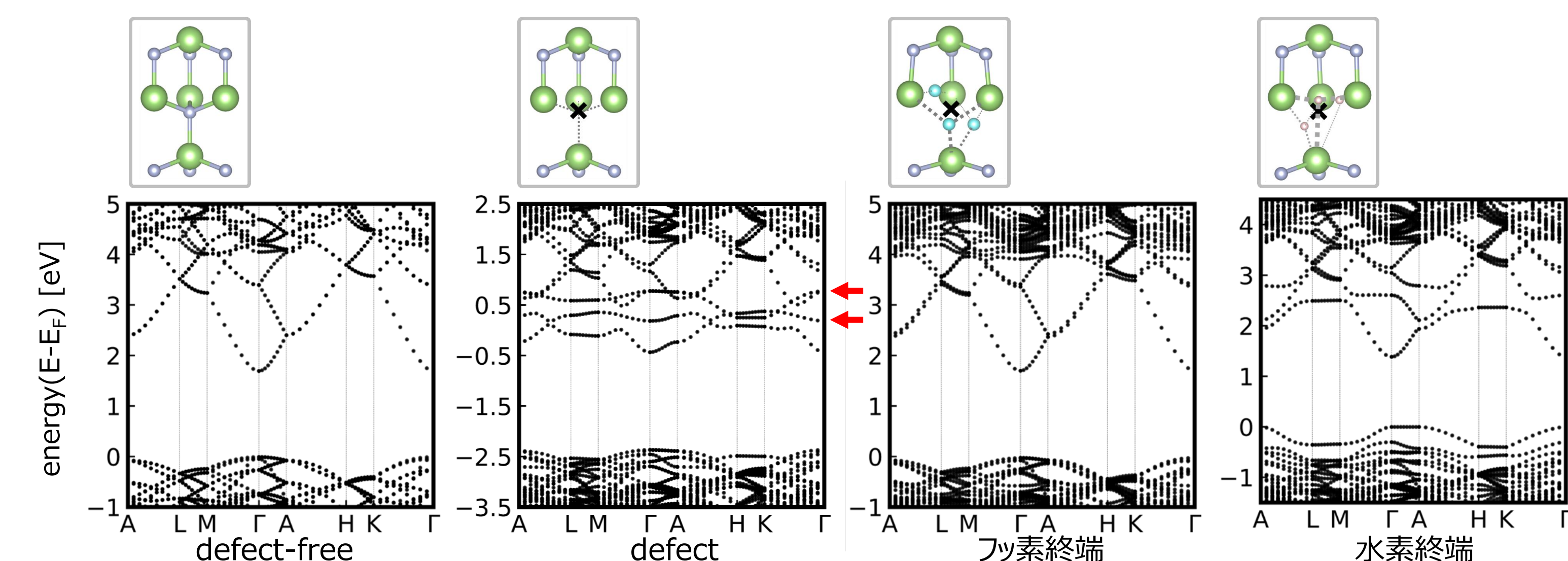
N空孔はGaNにおいてもっとも生じやすい欠陥の1つであり、伝導帯端近傍の欠陥状態の生成や、ホールの補償を通じてp型化の妨げとなっていると考えられる。本研究グループでは、フッ素(F)の導入により、N空孔近傍のダングリングボンドが安定に終端され、欠陥準位を効果的に除去することを報告した。ここでは時間に依存しない通常の密度汎関数理論(DFT)の枠組みで研究を行った。

構造モデル



計算条件	
手法	平面波基底によるDFT
使用ソフトウェア	VASP
モデルサイズ	3×3×3スーパーセル (108原子)
Cut-off energy	800 eV
交換相関汎関数	PBE-GGA
k点数	4×4×4

バンド分散図



F原子の数や位置の異なるモデルのほか、水素終端についても検討を行った。熱力学的安定性および電子状態変化を調べたところ、1つのN空孔に対し、3つのフッ素が欠陥近傍に配置する構造が安定かつ効果的に電子状態を改善することが明らかになった。より一般的な水素終端については、構造的にもFより安定性が低く、結合状態が生じるものの、バンド端近傍に残留することから、フッ素終端の優位性が示された。[1]

[1] Y. Fujishiro, TY, et al., J. Appl. Phys. 139, 085703 (2026).

これまでの関連研究：時間依存密度汎関数理論に基づくMg、CドープGaNのホール緩和の計算

現時点において、GaNに対するp型ドーパントはマグネシウムのみであり、そのほかの元素ではホール活性を維持できないことが知られている。我々は時間依存密度汎関数理論(TDDFT)を用いることにより、励起状態における電子緩和のダイナミクスをあらわに求め、ドーパントおよび欠陥によるキャリア散乱過程の解明に取り組んできた。

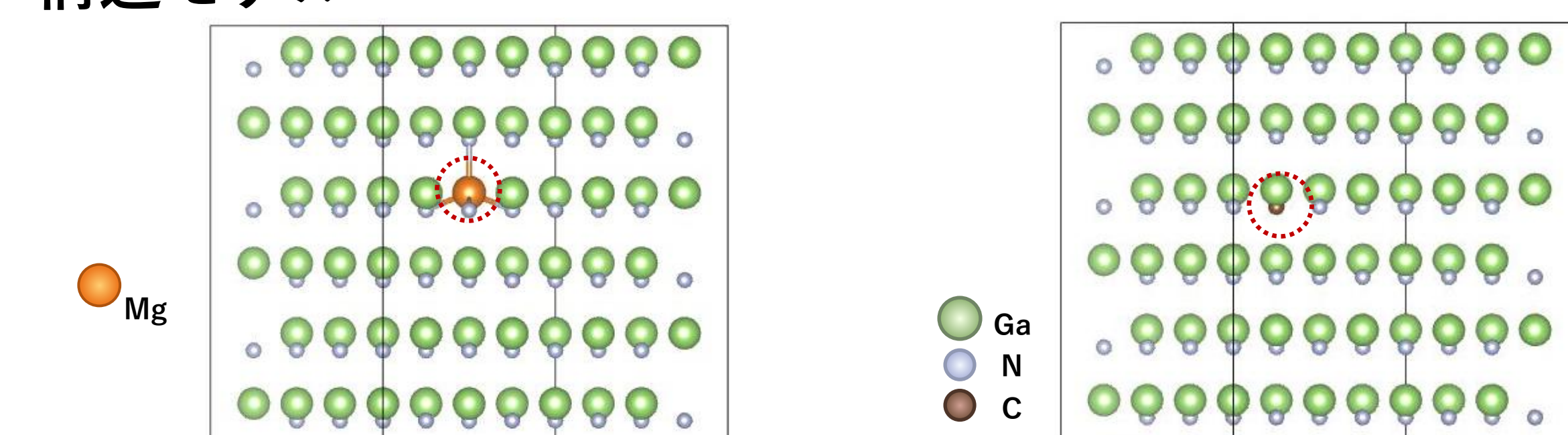
時間依存Kohn-Sham 方程式 [2]

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi_{n,k}(\mathbf{r}, t) = \{H^{KS} + \Delta V(\mathbf{r}, t)\} \psi_{n,k}(\mathbf{r}, t)$$

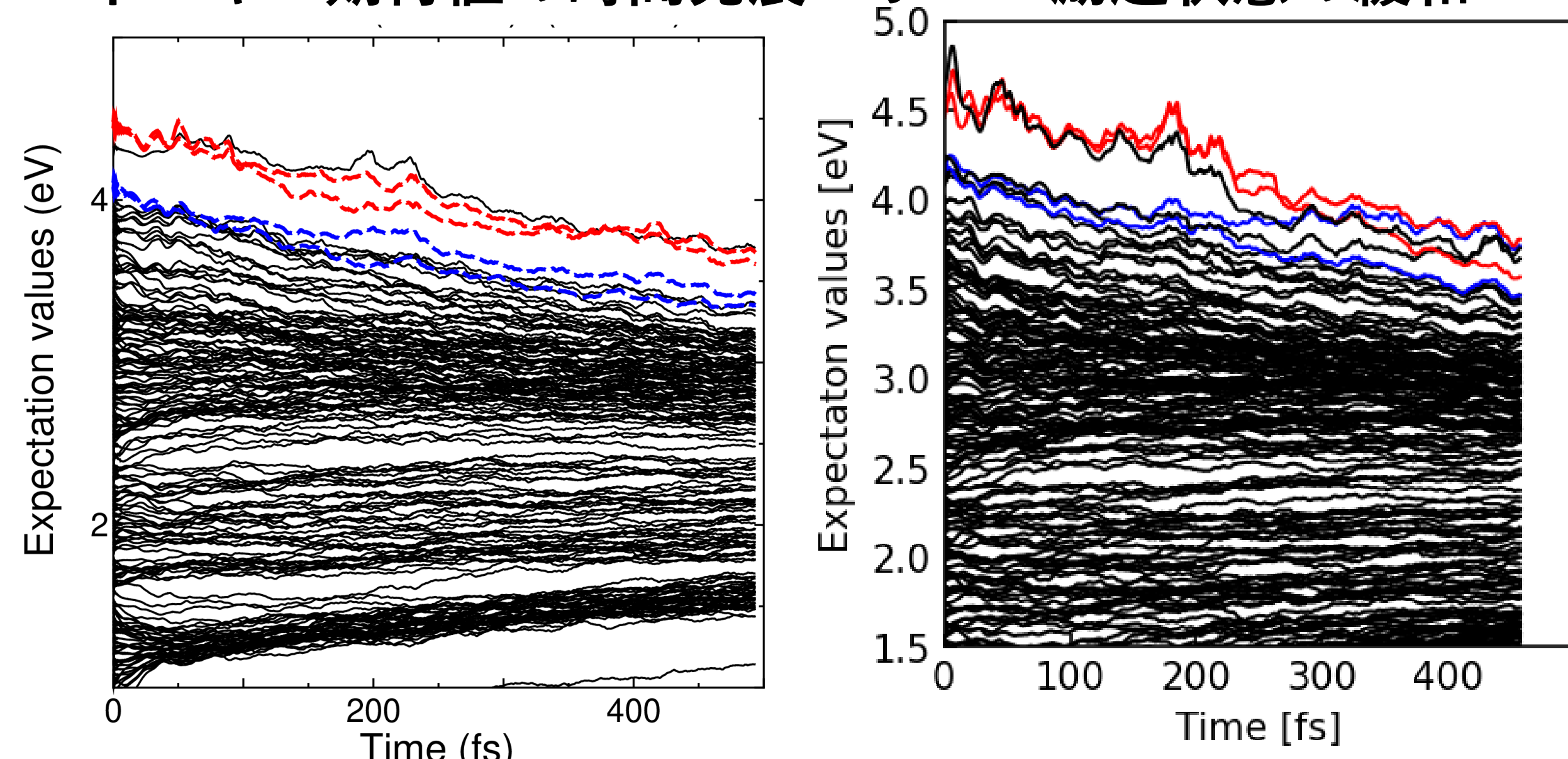
原子の熱運動と電子のダイナミクスを考慮し、
摂動論を超えた取り扱いにより自然に起こる電子遷移を再現する。 ⇨MDと連成

[2] Runge, E. & Gross, Phys. Rev. Lett. 52, (1984) 997-1000.

構造モデル



エネルギー期待値の時間発展：ホール励起状態の緩和



[3,4] O. Sugino and Y. Miyamoto, Phys. Rev. B, 59 (1999) 2579., Phys. Rev. B 66, 089901(E) (2002).
[5] FPSEID²¹ official site (<https://staff.aist.go.jp/yoshi-miyamoto/>)

GaをMgに置換したMgドープ(左)、NをCに置換したCドープ(右) GaN 4×4×3モデルにおいて、750Kでの熱平衡状態のもとでTDDFT計算を実行した。青、赤で示した状態はそれぞれ部分占有、占有状態であることを示し、エネルギーが低い位置に青い線があり、エネルギーが高い位置に赤い線があるときは、ホールが励起されていることを示している。ホールが緩和した場合、青と赤の線が交差し、部分占有状態が高いエネルギーレベルに変化する。Mgドープモデルでは、500fsの計算時間全体にわたって青、赤の線は交差することなく保たれていることから、ホールキャリアの寿命が500fs以上であることを確認した。Cドープモデルでは、約300fsで青と赤の線に重なりがみられ、これは緩和の始まりを示している。これはGaNのp型化が実験的にMgドープによってのみ達成されており、Cドープではp型化が実現されていないことと矛盾しない。

本研究では、これらの研究を進展させ、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)の枠組みの下でF終端により電子状態が改善したGaNに対しMgドープによってホールを生じさせ、ホールの時間発展挙動を調べる。有限温度と励起状態を考慮したより現実的な条件下で、F終端の有効性とホールの挙動を明らかにすることができると考えられる。