

課題名(タイトル): GaN 表面の酸化過程に関する理論研究

利用者氏名: ○隅田 真人

理研における所属研究室名: 革新知能統合研究センター 分子情報科学チーム

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

青色発光ダイオードの材料として知られる窒化ガリウム(GaN)は、半導体として多くの電子デバイス材料として使用されている。今後も、様々な電気デバイスの材料として応用が期待されているが、材料としての形成過程における GaN 表面の状態を解明することが不可欠である。本研究においては、GaN 表面の酸化過程を、実験と理論の両観点から、原子レベルでの解析を行なう。これまで O₂ビーム照射下における様々な GaN 表面に対する反応初期段階を密度汎関数理論による分子動力学(DF-MD)を用いて調べ、Spring8 による XPS の実験結果と整合性が良いことを確認した(*J. Phys. Chem. C* 2020, 124, 46, 25282-25290)。本研究では、H₂O ビーム照射による GaN 表面に対する酸化反応初期段階を DF-MD と XPS を用いて調べる。

2. 具体的な利用内容、計算方法

GaN 表面に吸着する分子の様子はこれまで検討されてきたが、人の偏見を入れず、なるべく自然な吸着状態を再現させるため、本研究においては分子動力学法を用いた。さらに、化学反応を扱うため、古典の分子動力学ではなく、量子力学に基づいた理論である密度汎関数理論と分子動力学法を組み合わせた DF-MD を用いた。DF-MD の計算には HOKUSAI でコンパイルされた cp2k(<https://www.cp2k.org>)を用いた。

3. 結果

計算モデルとして、120 原子程度で構成される GaN の板の上に9-10個の水分子を表面に配置させた初期構造を作った。1ノードあたり32 core を使用し、8ノードを用いる(256 core)と、0.5 fs の計算が、実時間で10-20 s 程度で終わることがわかった。現在、12 ps (10×10⁻¹² s) 程度計算が進んだ。残念なことに、一回の計算が250 fs 程度で、計算が止まる現象が起きるので、あまり計算が進まない。しかし、GaN 表面に水分子が簡単に吸着している様子は十分観察できた。GaN 表面の種類にもよるが、水分子は、概ね乖離吸着し、酸素分子よりも容易に吸着することがわかった。XPS の実験結果によると、酸素分子より、水分子が GaN 表面に吸

着しやすいことがわかっており、今回の計算結果との整合性は良い。

4. まとめ

DF-MD 計算を用いて GaN 表面における水分子の吸着状態を原子レベルで調べた。水分子は酸素分子よりも容易に吸着することがわかった。これは XPS の実験結果との一致も良い。

5. 今後の計画・展望

DF-MD による計算を進め、最低 100 ps はシミュレートしたいと思っている。得られた構造から水分子の吸着エネルギーや電子状態を算出し、実験と比較を行う。この解析によって GaN 表面の電子状態の解析によって、材料としての GaN 表面処理に適切な条件を提案できると期待している。

現状、cp2k による計算が原因不明で止まる現象が起こるので、原因究明をしたいと思っている。

6. 利用がなかった場合