



Title	First-principles calculations of the electronic and elastic properties of aluminum nitride under high pressure
Author(s)	加藤, 竜次
Citation	大阪大学, 1993, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/38238">https://hdl.handle.net/11094/38238</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href=" <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> ">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	加藤竜次
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第10790号
学位授与年月日	平成5年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	<b>First-principles calculations of the electronic and elastic properties of aluminum nitride under high pressure</b> (窒化アルミニウムの高圧下における電子構造と弾性的性質の第一原理からの研究)
論文審査委員	(主査) 教授 山中 高光 (副査) 教授 遠藤 将一 教授 張 紀久夫 助教授 宮城 宏 助教授 馬越 健次

### 論文内容の要旨

本研究は、窒化アルミニウムの高圧下における電子的構造および弾性的性質を第一原理から非経験的に明らかにすることを目的とする研究である。

本論文は次の二つの部分から構成されている。

第一部では、ウルツ鉱型および岩塩型の結晶構造について、第一原理擬ポテンシャル法を用いた計算を局所密度近似の範囲内で実行し、窒化アルミニウムの両構造における状態方程式と電子構造を、常圧および高圧状態で理論的に導き、また、その他の構造を加え、結晶構造間の安定性について調べた。その結果次のようなことがわかった。

計算により得られた格子パラメーターは実験とよく一致し、又結晶の軸比の圧力依存性は高圧下のX線による実験の結果を極めて良く説明できた。

第二部では、内部パラメーターを持つ結晶構造のスティフネス弹性テンソルに変分原理にもとづいて計算方法を与えた。

今回のこの方法をウルツ鉱型および岩塩型の結晶構造の窒化アルミニウムに適用し、これら構造におけるスティフネス弹性テンソルを常圧および高圧下すべての成分を非経験的に第一原理から決定し得た。計算された弹性テンソルは、測定されている実験値とよく一致し、今回の計算方法およびその適用が極めて有効であることがわかった。

### 論文審査の結果の要旨

本論文は、窒化アルミニウム(AIN)の常圧下でのウルツ鉱型(2H型)および高圧下における岩塩型の多型の電子構造と弾性的性質を第一原理から非経験的な理論に基づいて説明することを目的とする研究である。

第一部では、AINの両多型の結晶構造について、第一原理擬ポテンシャル法を用いた電子状態と全エネルギーの計算を、局所密度近似(LDA)の範囲内で実行し、状態方程式と電子構造を、常圧および体積比約0.7までの圧縮状態で理論的に導いた。また閃亜鉛鉱型や4H型構造においても、多型間の安定性について調べた。

AINはIII-V化合物半導体の一種である。ガリウム、インジウムの窒化物とともに、常圧でウルツ鉱型構造をとる点で、閃亜鉛鉱型構造をとる他の多くのIII-V化合物と異なっている。III-V化合物はイオン結合性と共有結合性を併

せもつ系として興味がもたれてきた。しかし AlN の理論的研究は、結晶構造が若干複雑になることなどから比較的小少なかった。

AlN が常圧下でとるウルツ鉱型構造は、単位胞内に 4 つの原子をもつていて、六方晶系に属し、格子内部パラメーターを持つ構造である。本研究において、結晶の軸比 ( $c/a$ ) と内部パラメーターの圧力依存性を理論的に調べた。軸比は報告されている実験値によい一致をみた。また理論的に導かれた内部パラメーターの圧力依存性は今後の高圧下での実験的研究により明確にされよう。ウルツ鉱型の状態方程式は、実験結果と極めてよい一致が得られた。しかし、高圧相である岩塩型構造ではそれほどよい一致は見られなかったのは、内殻の電子状態の圧力変化を考慮しなかったことが考えられるが、測定点が 2 点と少ないこともあり、現在のところその成否は明確ではなく、今後の詳細な実験的研究が望まれる。

今回得られた、価電子密度分布は、AlN が非常にイオン性の強い結合をもっていることを示している。一般に LD A に自己相互作用補正をとりいた結果、実験値 6.3 eV によく一致した 6.5 eV が得られた。このバンドギャップは圧力とともに拡大し、従ってイオン性が増す事を示している。岩塩型構造もギャップをもつ絶縁体で、価電子分布はイオン結晶の特徴を示すことがわかった。

今回調べた圧力範囲では安定構造は実験と対応しており、低圧でウルツ鉱型、高圧で岩塩型となり、閃亜鉛鉱型構造への転移はみられなかった。一方 4 H 多型構造は低圧で出現し得る可能性があることが明らかになった。また、ウルツ鉱型から岩塩型への転移圧は 7 GPa となり、実験値の 20 GPa に比べ低い値となったが、この転移はヒステリシスの大きい一次転移であることから、実験値が高い値が見積もられたと思われる。

第二部では、AlN の常圧および高圧下における、スティフェス弾性率テンソルを、非経験的な理論に基づいて計算した。対称性の低い構造では弾性率テンソルの独立な成分の数が増え、考慮すべき歪の種類が多く、また内部パラメーターのある結晶構造では、これが歪によって変化する事をも考慮して計算がなされた。

歪に起因する内部エネルギーの増加を、密度汎関数法に基づいて計算した結晶の全エネルギーの差で評価し、弾性率テンソルを求めた。格子内の原子位置は、各々の歪んだ結晶について、対称性から許される緩和について、最低エネルギーを与える状態を調べ決定した。得られた常圧の弾性率テンソルは、実験で音速の測定をもとに計算されたものとよく一致した。また、緩和を考慮しなければ、測定値を説明し得ない事を確認した。ウルツ鉱型の弾性率の圧力変化は測定されている音速の圧力変化を定性的に説明した。岩塩型についてはまだ実験が行われていない。今回の計算方法は、擬ポテンシャルを用いる計算においては、変分原理に基づかない“応力の定理”を用いる方法に比べ、取扱える元素の範囲が広い点で優れている。