

Ab-Initio Based Multiscale Calculations Of Extended Defects In And On Group III – Nitrides

Liverios Lymperakis

Zusammenfassung

Ende 1993 entwickelte S. Nakamura bei Nichia Chemicals die ersten hocheffizienten blauleuchtende Dioden auf GaN-Basis. Dieses Jahr läßt sich als Wendepunkt im Bereich der III-Nitriden Halbleiter bezeichnen, da fortan die Gruppe-III-Nitriden zu einem Schwerpunkt in der Halbleiterforschung wurden. Während enorme Fortschritte in der Qualität der Materialien und bei der Herstellung der Bauelemente erreicht wurden, ist das Verständnis der zugrunde liegenden Eigenschaften und Wachstumsprozesse häufig noch begrenzt.

Auf dem Gebiet der III-Nitride wird der Effekt, den Versetzungen auf die elektronischen Eigenschaften von GaN-Epilayern haben, kontrovers diskutiert. Versetzungen sind durch zwei unterschiedliche Längenskalen charakterisiert: Der Kernbereich der Versetzungen ist stark lokalisiert, während das durch die Versetzung verursachte Spannungsfeld (strain field) auch noch weit entfernt vom Versetzungskern ist. *Ab-initio* basierte Methoden haben sich zu äußerst zuverlässige Verfahren für Berechnungen im Bereich atomarer Größenordnungen entwickelt. Auf der anderen Seite sind die Möglichkeiten, diese Methoden auf große, auf vielen Atomen bestehende Systeme anzuwenden, stark begrenzt (durch die verfügbare Rechenkapazität). Es ist daher notwendig, eine Methode zu entwickeln, die die Beschreibung physikalischer Systeme auf allen relevanten Längenskalen erlaubt. Wir entwickelten daher *ab-initio* basierte Multiskalen-Ansätze, die auf ersten Prinzipien beruhende Berechnungen mit mesoskopischen Konzepten kombinieren. Ein möglicher Ansatz, der hier diskutiert wird, verwendet erste Prinzipien, Elastizitätstheorie und empirische Potentiale, wobei die mikroskopischen mit den makroskopisch relevanten Skalen verbunden werden. Die Genauigkeit dieses Zugangs wird im Prinzip nur durch die Genauigkeit der *ab-initio* Berechnungen begrenzt. Ein weiterer Ansatz wurde angewandt, um Wachstumsprozesse zu untersuchen (*ab-initio* atomare Thermodynamik). Hier werden auf ersten Prinzipien basierte Berechnungen mit dem thermodynamischen Konzept der chemischen Potentiale in Verbindung gebracht. Dies erlaubt es, die thermodynamische Stabilität verschiedener Systeme als Funktion der Wachstumsbedingungen zu berechnen.

Der erste Teil der Dissertation ist der Wachstum von GaN Oberflächen gewidmet. Es wird eine Vielzahl von Stufen-/Nachbarschaftskonfigurationen auf GaN-Oberflächen berücksichtigt. Dies geschieht für die (0001)-Orientierung, die technologisch am interessantesten ist. Dabei wird die thermodynamische Stabilität unter verschiedenen Wachstumsbedingungen untersucht. Ein wichtiges Ergebnis dieser Untersuchungen ist die Erkenntnis, dass N-reiche Bedingungen eine spontane Ausbildung von Stufen ermöglichen. Weiterhin zeigte sich, dass diese Instabilität unter metallreichen Bedingungen unterdrückt werden kann: Unter diesen Bedingungen ist eine lateral kontrahierte Bilayer Struktur thermodynamisch am günstigsten. Danach wenden wir uns dem Wachstum unter extrem Ga-reichen Bedingungen zu und untersuchen die Bildung und Stabilität kleiner Ga-Inseln auf den lateral kontrahierten Bilayer. Unsere Berechnungen zeigen, dass diese Inseln Nukleationskeime für die Bildung von Ga-Tropfen bilden. Anhand diese Resultate gelang es verschiedene kontrovers diskutierten Wachstumsuntersuchungen im Rahmen eines einheitlichen Modells zu erklären. Unsere Berechnungen zeigen ferner, dass Strukturen mit mehr als 2 Monolagen sowohl machbar als auch unter extrem Ga-reichen Bedingungen thermodynamisch stabil sind sogar für intrinsisch nicht-polare Oberflächen wie beispielsweise GaN (1100). Das ist beispielsweise für das Wachstum feldfreier Strukturen deusam.

Nach dem Studium von Oberflächen richtet sich der Schwerpunkt auf Grenzflächen, wobei eine aus sich abwechselnden Monolagen aufgebaute Struktur (monoatomic-scale ordering) einer AlGaIn-Legierung untersucht wird. In Übereinstimmung mit jüngsten Experimenten gelang es dabei zu zeigen, dass eine solche Struktur zu einer Reduktion der Bandlücke führt. Wir fanden, dass für diese Reduktion der Bandlücke eine Lokalisierung der Ladungsträger in einlagigen (monoatomic) GaN-Quantengraben, die zwischen AlN-Barriern eingebettet sind, verantwortlich ist. Im letzten Teil der Arbeit richtet sich der Blick auf ausgedehnte (extended) ein-dimensionale Defekte in GaN (Versetzungen). Mit unserem Multiskalen-Ansatz untersuchen wir eine Vielzahl unterschiedlicher Konfigurationen des Versetzungskerns. Wir zeigen, dass das äußerst starke lokale Spannungsfeld um den Kern der Versetzung in Verbindung mit der kleinen Gitterkonstanten von GaN zu energetisch tief liegenden Defektzuständen führt und daher elektrisch aktive Stufenversetzungen verursacht, auch wenn alle Atome im Kernbereich vollständig koordiniert sind.

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Multiskalen-Ansätze ermöglichen es, eine Vielzahl bislang ungelöster Probleme zu lösen und darüber hinaus ein mikroskopisches Verständnis ausgedehnter Defekte in und auf Gruppe-III-Nitriden zu erhalten. Die Arbeit wurde im Zeitraum Juli 2000 - Dezember 2004 in der Unabhängigen Nachwuchsgruppe des Fritz-Haber-Instituts der Max-Planck-Gesellschaft angefertigt.

Berlin, Januar 2005