

*Ліщук Ігор,
здобувач другого (магістерського) рівня вищої освіти
фізико-математичного факультету
Грищук Андрій,
кандидат педагогічних наук, доцент,
доцент кафедри фізики та методики її навчання,
Житомирський державний університет імені Івана Франка,
м. Житомир, Україна*

РОЗРАХУНОК ЕНЕРГЕТИЧНОЇ ЗОННОЇ СТРУКТУРИ НІТРИДУ ГАЛІЮ МЕТОДОМ ПСЕВДОПОТЕНЦІАЛУ З ВИКРИСТАННЯМ СУЧАСНОГО ПРОГРАМНОГО ЗАБЕЗПЕЧЕННЯ

Сплав GaN з InN утворює сплави $In_xGa_{1-x}N$ із забороненою зоною, що відповідає довжинам хвиль у видимій частині спектру. Регульований енергетичний зазор і узгодження близької ґратки make $In_xGa_{1-x}N$ сплавляє бажані матеріали для різних оптоелектронних застосувань, таких як світловипромінювальні діоди та лазери. Визначено внутрішню квантову ефективність цих пристроїв оскільки частка електронно-діркових пар, які

рекомбінують, випромінюючи фотон, обмежена різні безвипромінювальні процеси. Поряд із зусиллями по розробці нових оптоелектронних пристроїв для підвищення квантової ефективності, важливою проблемою є вивчення фізичних явищ, що визначають радіаційні та безрадіаційні процеси.

Було припущено, що рекомбінація Оже може бути одним із процесів з обмеженою ефективністю в вюрцит сплави $x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Результати дослідів під оптикою (фотолюмінесценція) (Shen et al. 2007) та електричні (електронно-емісійна спектроскопія) (Iveland et al. 2013).

Умови введення показують, що ефективність світловипромінюючих діодів InGaN знижується виникає внаслідок збудження процесів Оже. Було проведено кілька теоретичних досліджень виконано для розрахунку швидкості Оже-рекомбінації в нітридних сплавах. Розрахунки повної зонної структури швидкості прямої рекомбінації Оже (Бертацці та ін. 2010) також передбачають низькі значення, відповідальні за результати експерименту. Через цю невідповідність, враховано непрямий процес рекомбінації Оже за допомогою фононів. Було знайдено що непряма Ож-рекомбінація в сплавах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ є сильною, а значення розрахованих коефіцієнтів Ож є достатнім для пояснення експериментальних даних (Бертацці та ін. 2012; Зіновчук 2015). Розрахунки, наведені вище, були виконані з використанням віртуального кристала наближення (VCA) для моделювання зонної структури нітридних сплавів. Однак віртуальна кристалічна смугова структура не містить важливих характеристик фактичної смугової структури сплаву. Сплав GaN з InN призводить до розладу заміщення атомів Ga та In . Безлад заміщення порушує трансляційну симетрію та згортає зонну структуру, вводячи велику кількість дозволених міжзонних переходів Оже, які неможливо змоделювати в рамках СВК. У (Kiorakis et al. 2011, 2015) було досліджено вплив розладу сплаву на коефіцієнт рекомбінації Оже в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Виконували автори перші принципи розрахунків функціоналу густини для 32-атомних спеціальних квазівипадкових структура з 25% складу сплаву. Ця структура має особливу властивість є оптимальною 32-атомною суперкоміркою, яка відтворює короткодіючу кореляційну функцію випадковий сплав. Для моделювання швидкості Оже для різних складів сплавів провідність гуртів In .

Умови введення показують, що ефективність світловипромінюючих діодів InGaN знижується виникає внаслідок збудження процесів Оже. Було проведено кілька теоретичних досліджень виконано для розрахунку швидкості Оже-рекомбінації в нітридних сплавах. Розрахунки повної зонної структури швидкості прямої рекомбінації Оже (Бертацці та ін. 2010) також передбачають низькі значення, відповідальні за результати експерименту. Через цю невідповідність, враховано непрямий процес рекомбінації Оже за допомогою фононів. Було знайдено що непряма Ож-рекомбінація в сплавах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ є сильною, а значення розрахованих коефіцієнтів Ож є достатнім для пояснення експериментальних даних (Бертацці та ін. 2012; Зіновчук 2015). Розрахунки, наведені вище, були виконані з використанням віртуального кристала наближення (VCA) для моделювання зонної структури нітридних сплавів. Однак

віртуальна кристалічна смугова структура не містить важливих характеристик фактичної смугової структури сплаву. Сплав GaN з InN призводить до розладу заміщення атомів Ga та In. Безлад заміщення порушує трансляційну симетрію та згортає зонну структуру, вводячи велику кількість дозволених міжзонних переходів Оже, які неможливо змоделювати в рамках СВК. У (Kiourakis et al. 2011, 2015)

Сплав $0,25\text{Ga}$ $0,75\text{N}$ жорстко зрушували за допомогою ножиць для регулювання ширина забороненої зони, зберігаючи хвильові функції фіксованими для сплаву $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{N}$. У наведених тут розрахунках вищевказані припущення не були зроблені.

Мета даної роботи полягає в дослідженні рекомбінації Оже за допомогою сплаву без зміщення ножиць і включення усі можливі впливи складу сплаву на зонну структуру та матричний елемент Шнековий перехід. Для цього ми виконали обчислення коефіцієнта Оже за допомогою діапазону структура та хвильові функції 256-атомної суперкомірки з випадково розподіленими In та Ga атомів. Ми розглядали лише сплави n-типу $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, оскільки більшість нітридних оптоелектронних пристроїв містить n-InGaN як активний шар. Розраховані коефіцієнти Оже були усереднене за кількома випадковими розподілами атомів для даного складу. Особливо приділено увагу величині коефіцієнтів Оже для складів сплавів що відповідає видимому спектру.

Щоб включити ефекти розупорядкування сплаву на рекомбінацію Оже в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, було використовували 256-атомну суперкомірку, отриману трансляцією елементарної комірки вюрцита вздовж базисних векторів ($4 \times 4 \times 4$ суперкомірка). Вибір розміру суперкомірки визначається обчислювальні витрати, необхідні для розрахунку великої кількості електронних станів на a fnc k-точкова сітка в зоні Бріллюена (повнозонна структура). Атоми Ga та In були випадковими розподілені по сайтах катіонів вюрциту. Було досліджено п'ять випадкових атомних розподілів для заданого складу сплаву x. Для кожного розподілу було визначено коефіцієнт Оже розрахований. Остаточні результати, наведені в цьому документі, є усередненими випадковими значеннями атомарні розподіли. Постійні ґратки та внутрішні параметри для бінарних GaN та InN сполуки вибрано як $a=3,189$ і $3,544$ Å, $c=5,185$ і $5,718$ Å, $u=0,3768$ і $0,3790$ (Strite and Morkoç 1992). У сплавах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ постійна ґратки $a(x)$ і $c(x)$ або параметри суперкомірки потребують додаткового дослідження через атомну релаксацію. Теоретичний аналіз атомної релаксації у вюрциті $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ показує невелике відхилення від постійні решітки з правила Vegarda (Mattila and Zunger 1999; Liou et al. 2005). До для врахування цього відхилення ми виконали розрахунки з використанням постійного вигину решітки параметри $\delta(a) = 0,047$ Å та $\delta(c) = -0,117$ Å (Liou et al. 2005). Для отримання ел структуру для кожної конфігурації суперкомірки, ми використовуємо емпіричний метод псевдопотенціалу який був успішно застосований для вивчення подвійних InN і GaN (Goano et al. 2000; Pugh та ін. 1999).

Обернено-просторова аналітична форма атомних псевдопотенціалів

$$V(q) = \begin{cases} a_1 + (a_2 - a_1) \left(1 - \left(1 - \exp \left(- (a_3 (a_4 - q^2))^2 \right) \right) / \left(1 - \exp \left(- (a_3 (a_4))^2 \right) \right) \right) & \text{if } q^2 \leq a_4 \\ a_2 \exp \left(- (a_5 (q^2 - a_4))^2 \right) & \text{if } q^2 > a_4 \end{cases}$$

де q в одиницях ($2\pi/aef$)

[aef — ефективний параметр решітки $a_3 \text{ eff} = \sqrt{3}a_2c$ (Christensen and Gorczyca 1994)].

Форма залежить від набору настроюваних параметрів $\{a_1, a_2, a_3, a_4, a_5\}$, які визначаються прив'язкою до електронних структур перших принципів (Svane та ін. 2010) та експериментальні властивості (енергетичні щільності та ефективні маси) бінарних нітриди.

Отримані значення (в атомних одиницях) для регульованих параметрів:

$\{a_1=-1,41, a_2=1,37, a_3=0,16, a_4=4,58, a_5=0,01\}$ для Ga;

$\{a_1=-0,49, a_2=0,005, a_3=0,19, a_4=11,96, a_5=0,62\}$ для N (у GaN);

$\{a_1=-1,44, a_2=0,85, a_3=0,23, a_4=4,05, a_5=0,08\}$ для In;

$\{a_1=-0,58, a_2=-0,04, a_3=0,09, a_4=11,17, a_5=0,31\}$ для N (в InN).

Всупереч У бінарних системах атоми N у сплавах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ оточені різними атомами катіонів. Псевдопотенціал кожного атома N у суперкомірці залежить від кількості p найближчих сусідніх атомів Ga та In в атомному тетраедрі $\text{Ga}_p\text{In}_{4-p}$ ($0 < p < 4$). Ми включили це залежність у розрахунки з використанням наближення (Kim et al. 2002).

$$V_N[\text{Ga}_p\text{In}_{4-p}\text{N}] = \frac{4-p}{4} V_N[\text{InN}] + \frac{p}{4} V_N[\text{GaN}]$$

Усі розрахунки в цій роботі були виконані з використанням плоскохвильового базису з обріз кінетичної енергії $10,5 R_y$ ($\sim 12\,000$ плоских хвиль для розширення хвильових функцій). Це значення було вибрано для забезпечення збіжності псевдопотенціального гамільтоніана власні значення. З обчисленням швидкості рекомбінації Оже виникають дві обчислювальні проблеми. Першим викликом є діагоналізація псевдопотенціального гамільтоніана отримати всі власні значення обчислювально дуже дорого. Виникає другий виклик через це необхідно виконати діагоналізацію для fne k -точкової сітки в Бриллюєне зони для конвергентної швидкості Оже. Однак лише обмежена кількість провідників і валентні зони беруть участь у переходах Оже, тому нам потрібні лише власні значення в заданому енергетичний діапазон.

Для вирішення цієї проблеми ми використали метод Якобі–Девідсона з багаторівневим неповним прекодиціонуванням LU (Tackett and Di Ventura 2002; Bollhöfer and Notay 2007). Цей метод обчислює вибрані власні значення та відповідні власні вектори, які є найближчими до цільового значення енергії без діагоналізації повного гамільтоніана. Лінійне масштабування методу по відношенню до кількості атомів надкомірці значно покращується обчислювальна ефективність. Наші попередні розрахунки показали, що 35

провідні 7 станів валентної зони в кожній k-точці необхідно обчислити, щоб взяти до уваги врахувати всі оже-переходи в нітридних сплавах n-типу.

Швидкість процесу eeh-Оже, який домінує в матеріалах n-типу, визначається як (Laks та ін. 1990)

$$R = 2 \frac{2\pi}{\hbar} \frac{V^3}{(2\pi)^9} \int \int \int \int |M(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_{1'}, \mathbf{k}_{2'})|^2 f_n(E_1) f_n(E_2) f_p(E_{1'}) (1 - f_n(E_{2'})) \times (1 - \exp[(E_{Fp} - E_{Fn})/k_b T]) \delta(E_1 + E_2 - E_{1'} - E_{2'}) d\mathbf{k}_1 d\mathbf{k}_2 d\mathbf{k}_{1'} d\mathbf{k}_{2'}$$

де M – матричний елемент Оже екранованої кулонівської взаємодії; $f_n(E)$ і $f_p(E)$ —

функції Фермі–Дірака; E_{Fn} і E_{Fp} – електронний і дірковий квазірівні Фермі; індекси 1, 2

1' позначають стани електронів у зоні провідності до рекомбінації та дірку у валентній зоні;

індекс 2' – стан збудженого електрона після оже-переходу;

V—об'єм кристала.

Для розрахунку матричного елемента Оже використовувалася статична модель діелектрична функція (Cappellini et al. 1993) і довжина екранування Дебая. Підсумовування за векторами зворотної решітки (термами $umklapp$) проводилося за підходом Лакса та ін. (1990). Такий підхід зводить чотирикратне підсумовування до двократного що значно скорочує час обчислень. Хороша конвергенція досягається, коли У підсумок включено 50 термінів $umklapp$. Визначено квазірівні Фермі від відомої концентрації та температури носія. Інтеграція по зоні Бріллюена виконується за методикою Монте-Карло. Тести збіжності показали, що прямокутний K-точковий інтеграційні сітки, що підтримують прийнятний час обчислення, занадто грубі поблизу екстремуми смуги і призводить до переоцінки квазірівнів Фермі, що впливає на статистичний фактор у рівнянні. (3). Щоб точно описати розповсюдження безкоштовних носіїв стани поблизу екстремумів смуги та враховують найбільш імовірні переходи Оже була прийнята неоднорідна сітка k-точок. K-простір усередині сфери з

$$\frac{2\pi 2\pi}{c}$$

радіусом $0,1 \cdot c$ (де c позначає постійну решітки) з центром у Г-точці було дискретизовано із сіткою fnc ($31 \times 25 \times 49$) у сферичних координатах (31, 25 та 49 – номери точки дискретизації вздовж радіуса сфери, полярного півкола та азимутального кола). На решті частини використано звичайну прямокутну сітку ($51 \times 51 \times 33$) Зона Бріллюена. Значення енергії та хвильові функції в кожній із 1909 k-точок усередині незвідного клина зони Бріллюена розраховано методом емпіричного псевдопотенціалу. Виявлено, що різниця між коефіцієнтом Оже, розрахованим з 1909 і 2394 k-точок сітки в незвідному клині зони Бріллюена становить менше 7%. Тому всі результати, наведені в цій статті, були отримані з використанням сітки 1909 k-точок. Ми застосували відсічення енергії, щоб обмежити кількість k-точок, залучених до багатовимірності числове інтегрування. Інтегрування проводилось по вихідним електронам (k_1, k_2) і

отвори (k_1') стани, де статистичний фактор не є незначно малим. Як останнє зауваження, дельта функція в рівнянні (3) апроксимується гауссовою скінченною шириною $\Delta\varepsilon$. Різні значення $\Delta\varepsilon$ були використані в цій статті для вивчення впливу $\Delta\varepsilon$ на кінцеві результати.

Список використаних джерел та літератури

1. Shen, Y.C., Mueller, G.O., Watanabe, S., Gardner, N.F., Munkholm, A., Krames, M.R.: Auger recombination in InGaN measured by photoluminescence. *Appl. Phys. Lett.* 91, 141101–141103 (2007)
2. Strite, S., Morkoz, H.: GaN, AlN, and InN: a review. *J. Vac. Sci. Technol. B* 10, 1237–1266 (1992) Svane, A., Christensen, N.E., Gorczyca, I., van Schilfgaarde, M., Chantis, A.N., Kotani, T.: Quasiparticle self-consistent GW theory of III–V nitride semiconductors: bands, gap bowing, and effective masses. *Phys. Rev. B.* 82, 115102 (2010)
3. Tackett, A.R., Di Ventura, M.: Targeting specific eigenvectors and eigenvalues of a given Hamiltonian using arbitrary selection criteria. *Phys. Rev. B* 66, 245104 (2002)
4. Zinovchuk, A.V.: Numerical determination of concentration-dependent Auger recombination coefficient in n-InGaN alloys. *Opt. Quant. Electron.* 47, 2399–2406 (2015) *gon Cross // Rom.Journ.Phys.* 2007. Vol. 54. №.1-2. P. 37-47.
5. Zinovchuk, A.V., Gryshuk, A.M. Alloy-assisted Auger recombination in InGaN // *Optical and Quantum Electronics*, 2018, V. 50 455 P.