

研究快讯

含 InAs 自组装量子点肖特基二极管的 关联放电效应*

李宏伟 王太宏

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2001 年 7 月 20 日收到)

制作了含自组织量子点的金属-半导体-金属双肖特基势垒器件, 研究了器件的电流输运特性. 在量子点充放电造成的电流迟滞回路的基础上, 观察到了电压扫描过程中的电流由低态到高态的跳跃现象. 这种电流跳跃来源于充量子点的关联放电效应. 根据量子点系统的哈密顿量, 分析了充量子点关联放电的原因. 这种关联放电效应起源于量子点与 2DEG 的相互作用, 当一个量子点放电时通过量子点和 2DEG 电流的变化会影响其他的量子点, 从而促使其放电, 这种过程在整个系统中放大导致所有的量子点放电.

关键词: 关联效应, 自组装量子点

PACC: 7360L, 7340S, 6865

1 引 言

随着外延和加工技术的进步, 人们的研究越来越深入到低维的小结构之中^[1]. 半导体自组织量子点是人们研究的一个热点, 其三维限制结构决定了这种量子点有特殊的电学和光学性质^[2,3], 具有广阔应用前景.

在以前的文章中^[4], 我们报道了通过自组织量子点器件的电学输运行为. 我们制作了含单层量子点的金属-半导体-金属(MSM)双肖特基势垒器件, 测试了器件的电流输运特性, 观察到了量子点的充放电效应引起的电流调制现象. 量子点的充放电状态影响了有效肖特基势垒的高度, 使通过器件的电流变化. 随着外加电压的变化, 量子点的充放电状态相互转换, 使通过器件的电流在两个状态之间发生变化, 形成电流回路. 量子点被充入的电子数愈多, 放电后形成的电流回路就愈大. 我们分析了电流回路的大小与充放电条件的关系, 发现对充电效应起作用的主要是量子点的基态, 量子点中激发态的影

响很小.

2 测试结果

本文报道器件输运中的另外一种现象. 图 1 给出 MSM 器件的结构示意图及其等效电路, 器件的具体结构和工艺见文献[4]. 在对器件的 $I-V$ 测试中, 77K 下我们不仅观察到了电流回路现象, 而且在电压增大的扫描过程中还观察到电流由低态到高态的跳跃现象. 如图 2(a) 中上面的曲线所示, 为了比较, 图中下面的曲线给出了正常情况下的结果. 在图 2(b) 中给出了这两种情况下 $I-V$ 曲线的微分结果, 每个图中上面的曲线都有四个数量级的平移. 下面, 主要讨论这种现象的特点及其产生的机制.

在对所有器件的 $I-V$ 测试中, 大部分器件在多数情况下给出正常的有圆滑回路的 $I-V$ 曲线, 只有一部分器件有时给出与图 2(a) 上面曲线类似的电流跳跃结构. 对应图 2 的器件有 52% 的曲线发生了这种情况, 但跳跃时的电压位置各不相同. 我们把跳跃点称为 X 点, 图 3 给出了这个器件在很多次测试

* 国家自然科学基金(批准号 69925410 和 19904015)资助的课题.

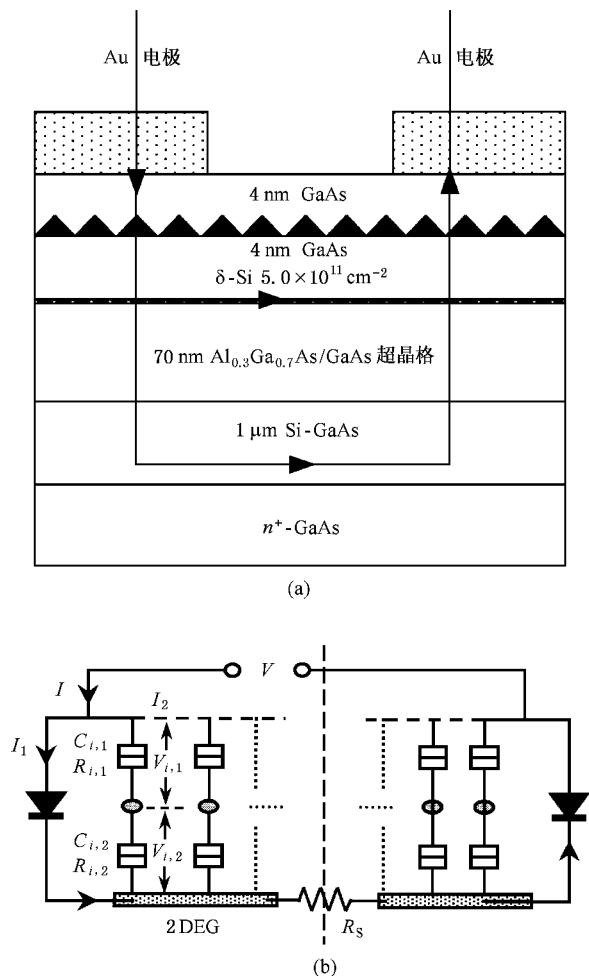


图 1 含量子点的 MSM 器件结构示意图 (a) 及其等效电路 (b)

中有跳跃结构的曲线中的跳跃点 X 随电压分布的统计柱状图,图中黑色曲线是利用两个高斯分布给出的拟合结果,可以看出电压分布有明显的双峰结构,拟合参数见表 1.可以看出发生跳跃最多的两个位置对应的电压为 -0.656V 和 -1.14V ,在大于 2.0V 的偏压范围没有类似的跳跃现象发生.这些测试结果显示电流跳跃是一种随机过程,但跳跃位置的概率分布相对稳定.

表 1 器件中的跳跃结构的电压分布高斯拟合参数表

拟合峰	峰位	半峰宽	面积
1	-0.656 ± 0.016	0.213 ± 0.03	3.123 ± 0.49
2	-1.145 ± 0.081	0.39 ± 0.20	1.565 ± 0.63

3 实验结果分析

在实验中,测试设备的电压扫描速度可以在每

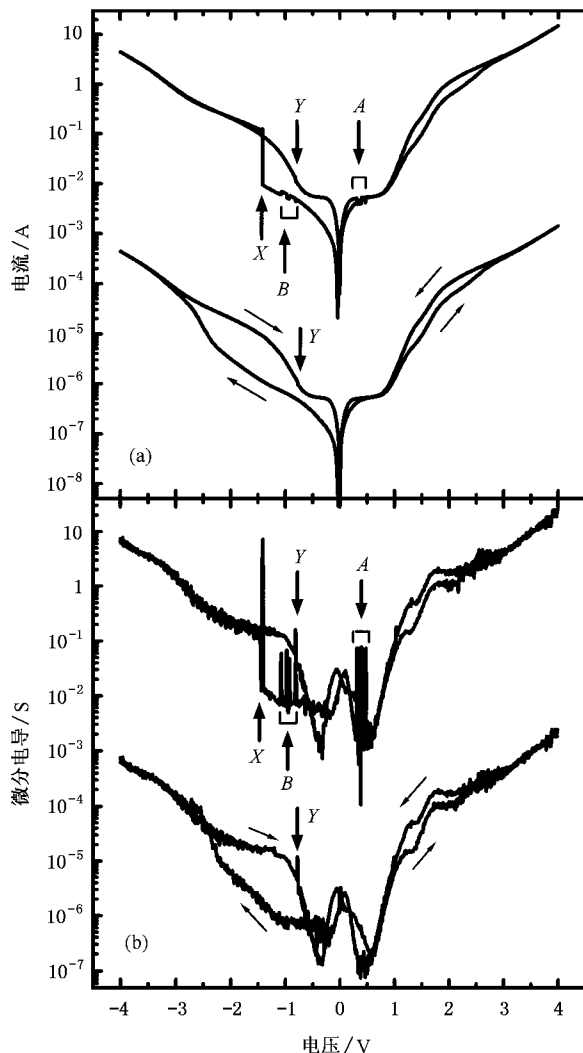


图 2 MSM 二极管在多次扫描时有跳跃结构和正常情况下的 $I-V$ 曲线 (a)

个数据点 $80\mu\text{s}-2\text{s}$ 之间变化,我们注意到电流回路大小以及跳跃结构出现与否与设备的电压扫描速度无关.但是伴随着跳跃结构,通常在跳跃之前的低电压范围处出现一些小的电流振荡结构,这些小的电流振荡结构可以在微分曲线中明显的表现出来.在图 2(a)中,有跳跃结构的曲线在 A 和 B 所标示的区域可以观察到小的电流振荡,图 2(b)中有对应结构.这些小的结构在每次电压扫描时各不相同,也是一种随机过程.我们在测试中观察到它们的出现与否与 X 点的电流跳跃有一定关系:在有电流跳跃的曲线上,在电流跳跃之前总是先出现这些小结构,但是这些小结构的出现并不一定导致电流跳跃.我们认为,测试过程中小振荡结构是由于一些量子点的随机充放电过程引起的,而大的电流跳跃则是由于

所有量子点同时放电造成的.

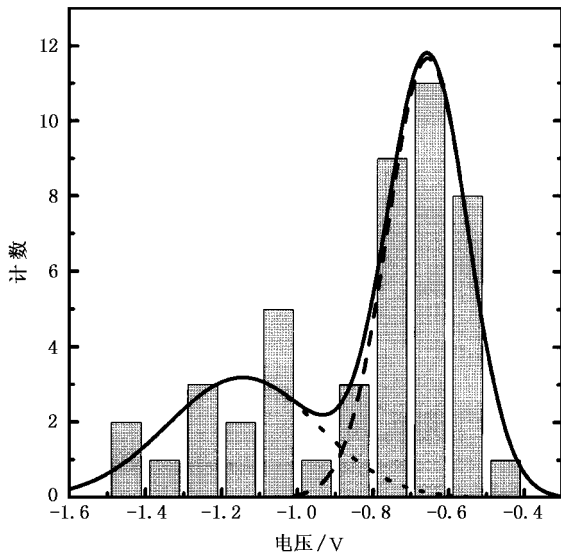


图3 器件中所有电流跳跃结构曲线的跳跃电压位置统计结果 (图中曲线为高斯分布拟和结果)

在如图 1(a)所示的器件中因为有隧穿电流通过量子点(包括共振和非共振两部分),所以每个量子点都可以认为是一个平行电流通路,且每个量子点的充放电状态可以调节通过量子点及其邻近区域的电流大小.我们曾经讨论过当量子点处于充电状态时,通过量子点区域的电流受到阻塞,整个器件电流较小;反之当量子点处于放电状态时,通过量子点区域和整个器件的电流都较大.因此可以认为量子点的充放电过程是控制这两种电流态之间相互转换的开关.我们可以把通过反向肖特基势垒的电流分成两部分:一部分为通过不受量子点充放电影响的区域的电流 I_1 ,另一部分为通过量子点及其附近区域的电流 I_2 .电流 I_1 主要由 Au-GaAs 肖特基势垒本身的性质决定,与量子点的充放电过程无关,进而与电压的扫描方向无关,在一定偏压下是常量.我们的测量曲线中的电流回路是由于电流 I_2 的变化引起的.在图 1(b)中给出了器件的等效电路示意图,每一个量子点相当于一个电流通路.每一个含 InAs 量子点的金属半导体接触可以认为是一个对应电流 I_1 标准的肖特基势垒二极管与很多量子点电流通路的并联.每一个量子点电流通路由其 R_1, C_1 和 R_2, C_2 等隧穿参数控制.其中电阻 R_1 和电容 C_1 代表了量子点和金属之间的耦合作用,包含了量子点区域中的金属半导体接触的影响,电阻 R_2 和电容 C_2 代表了量子点与其下部二维电子气之间的耦合

相互作用.图中 R_s 代表了两个电极接触之间的 2DEG 的电阻.

因为量子点与上下结构有耦合,其充放电状态的变化将会通过 R_1, C_1 和 R_2, C_2 影响到金属电极和 2DEG.但因金属中自由电子浓度很高,量子点充放电状态的变化不足以影响金属的导电性能.相反,量子点下部 2DEG 中电子浓度较低,量子点的放电会明显地改变量子点处 2DEG 中的电子浓度和电流密度,另外因为通过器件的电流在 2DEG 区域是水平流过的,当一个量子点处 2DEG 的电流发生变化时,其他量子点处 2DEG 的电流也相应发生变化,因为量子点与其附近的 2DEG 电流有相互作用,2DEG 电流的增加也很容易影响到量子点中电子,使其静电势增加,促使其状态发生变化.这种相互作用正是人们利用量子点制作单电子存储器的基础^[5],在单电子存储器中量子点存储的电子通过静电耦合影响晶体管沟道中的电流,不同的充电状态对应的电流不同,因此晶体管电流的变化可以反映电子在量子点中的存储状态.同时沟道中电流的变化也会改变量子点的势能在一定条件下使量子点充电或放电^[6].在我们的器件里,2DEG 电流的变化不足以引起量子点的充电,我们在前面讨论过只有当肖特基势垒处于正向偏压下 2DEG 的电势很高时才有明显的充电效应.在这里 2DEG 电流的增加只是引起量子点电子静电势能在一定程度上的增加,在外电场的作用下这相当于电子隧穿出量子点的势垒高度下降,由方程可知电子隧穿出量子点概率和隧穿势垒高度成超指数关系变化,这样在反偏肖特基的电场作用下电子很容易隧穿出量子点,使量子点放电.因此在我们的器件中当一些量子点放电时,很容易影响到其他的量子点也使它们放电,从这种意义上可以说量子点放电过程是可以相互影响、相互关联的.

在文献中,人们研究了量子点等纳米结构器件中的相关性^[7,8],一般的讲,各种现象的相关性都来源于器件中电子的库仑和交换相互作用.在多量子点填充时一个量子点的电子填充状态会通过库仑相互作用影响到另一个量子点,从而导致很多物理现象的排斥和共存.最近, Egger 等人预言在含有单个杂质的强相关量子线系统中,电子输运过程存在双稳和迟滞回路现象^[9],这种现象起源于杂质散射的反馈作用.

在我们的测量曲线中,电流在 X 点跳跃前后对应的电流分别是量子点处于充电和放电状态时对应

的电流,因此这种电流跳跃过程与量子点的充放电状态的转换有关,电流在很短的时间内由低态跳至高态的过程,对应着一个电极中量子点瞬态放电的弛豫过程.这种弛豫后的状态与在较大反偏电压下量子点放电之后的状态相同,所以给出的电流与反向扫描时的电流一致.

为了进一步理解和确认所有量子点突然放电的原因,我们分析一个含 InAs 量子点的金属半导体肖特基接触系统的哈密顿量.一般来说,这种系统的哈密顿量可写成如下几部分之和:

$$H = H_{\text{QDS}} + H_m + H_{2\text{DEGS}} + H_{\text{QDS} \rightarrow m} + H_{\text{QDS} \rightarrow 2\text{DEGS}} \quad (1)$$

其中前三项分别为不考虑相互作用时量子点层、金属电极、2DEG 的哈密顿量,最后两项为量子点层与金属电极和 2DEG 的相互作用.在下面的分析中我们忽略金属电极和 2DEG 的哈密顿量,只考虑量子点和与之相关的相互作用项,此时系统的哈密顿量可以具体地写为^[10]

$$H = \sum_i n_i \varphi_i + \frac{e^2}{\epsilon} \sum_i \frac{n_i(n_i - 1)}{2C_{i,\Sigma}} + \frac{e^2}{\epsilon} \sum_i \frac{n_i^2}{4d} - \epsilon(V_m + V) \sum_i n_i + \frac{e}{\epsilon} \sum_{i < j} n_i n_j \mathcal{K}(r_{ij}) + \sum_i H_{2\text{DEG}}(n_i, R_{i,1}, C_{i,2}), \quad (2)$$

其中下标 i 和 j 是对量子点的编号, n_i 是第 i 个量子点中的电子数.式中第一项是由量子点尺寸涨落引起的能级的差别对应的非库仑能量.第二项是量子点的充电能,它对应于实验中观察到的库仑阻塞和电流回路等相关现象. $C_{i,\Sigma}$ 是第 i 个量子点的总电容,通常和量子点中的电子数 n_i 有关,可写为 $C_{i,\Sigma} = C_{i,1} + C_{i,2} + C_{i,x}$,其中 $C_{i,1}$ 和 $C_{i,2}$ 分别是量子点与金属栅和 2DEG 的耦合电容, $C_{i,x}$ 是剩余电容,其值一般较小.这一项中的乘积因子 $n_i(n_i - 1)$ 是考虑到电子不会与自身相互作用的结果.式中的第三项是量子点中电子与距离为 d 的金属电极中镜像电荷的相互作用,第四项代表了量子点处电场的影响,对应的电势包括肖特基势垒的内建电势 V_m 和外加偏压 V_0 ,第五项是不同量子点电子之间的耦合相互作用,它考虑了金属电极对电子库仑作用的屏蔽效应,可写为

$$\mathcal{K}(r) = \frac{e}{\epsilon} \left[\frac{1}{r} - \frac{1}{\sqrt{r^2 + 4d^2}} \right]. \quad (3)$$

方程(1)中的最后一项代表了量子点中的电子

和 2DEG 之间的耦合相互作用,这种相互作用是量子点中电子数及其与 2DEG 的耦合参数的函数,与它们之间电子的库仑相互作用和隧穿效应有关^[11].

方程(1)中的前四项得到了人们系统地分析和研究^[10],量子点的充放电过程以及通过量子点的库仑阻塞可以用这四项给予解释.第一项和第三项导致肖特基势垒正向时电流对量子点的充电效应,第二项对应量子点充电后的库仑阻塞作用.当含充电量子点的肖特基势垒处于反偏时,随着反向偏压的增大,方程第四项在对量子点的影响越来越大,在偏压值大于 2.0V 以后逐渐导致量子点放电,最后两个电压扫描方向的电流之间的差别消失($|V| = 30\text{V}$ 的情况).当电压扫描在到达端点返转后,因为没有方程(1)中的第二项的作用,器件给出高电流态曲线.方程中的最后两项在以前的文献中考虑较少,文献[10]中计算了不同量子点间的库仑相互作用,结果显示量子点与金属电极之间的距离越小,屏蔽的库仑相互作用能越小,考虑这一项之后给出的修正也就越小.从方程(2)也可以看出,当 d 减小时,括号中两项之差减小.在我们的器件结构中,量子点与金属电极之间的实际距离不大于 4nm,量子点之间的距离根据 AFM 测试的结果为 $38 \pm 8\text{nm}$,我们可以认为 $r \gg d$,此时这一项对整个哈密顿的影响可以忽略.

方程(1)的最后一项,即量子点和 2DEG 之间的相互作用对我们器件的电流输运特性有很大的影响.量子点和 2DEG 之间的相互作用必须考虑两个方面:1)量子点层的充放电状态对 2DEG 横向输运特性的影响;2)2DEG 的输运状态对量子点中电子的影响.在以前的文献中^[12,13],人们研究了量子点的充放电状态对 2DEG 输运特性的影响,相反的另一个过程即 2DEG 中的电子输运对量子点电子态的影响却很少受到关注.在 2DEG 电流增加时其电子对量子点电子的库仑散作用也增加.在我们的器件中,量子点和 2DEG 之间的距离为 4nm,小于量子点中电子的有效玻尔半径 $a_B^* = (m_e/m) \epsilon a_B$ 为 10nm,在肖特基势垒内建电场和外加偏压作用下,量子点中电子波函数有向 2DEG 方向扩展的趋势,更易于与 2DEG 中的电子产生排斥相互作用,这种相互作用很容易在 2DEG 中形成反点(antidot)结构,因此对 2DEG 来说充电量子点相当于一个个的散射中心^[14].有人曾经在类似的反点结构中观察到混沌输运特性^[15],当 2DEG 中电子浓度变化时,量子点电子

的静电时增加的同时还有电子间的库仑散射相互作用,这些变化对量子点电子来说相当于微扰,又因为量子点电子本身具有逃逸量子点的趋势,在这种微扰的作用下很容易使量子点放电。

综上所述,通过器件的电流输运过程可作如下解释.肖特基势垒处于正向时,其中的量子点俘获电子进入充电状态.正常的测试中只有当肖特基势垒处于反向且外加电压逐渐增大到一定程度时,才能将量子点中的电子逐渐赶出,因此电流连续变化,形成环状迟滞回路.然而,由于量子点中的电子和2DEG的相互作用的影响,在较小的偏压(小于2.0V)对一个小的随机噪声将会导致一些量子点的放电,这种放电将会影响通过量子点区域的电流,造成图1中区域A、B中的小振荡结构.这种噪声可能是由介观系统的电导涨落产生的^[16],也可能来源于量子测量过程本身^[17].当一个小区域中的量子点放电时会影响到量子点处2DEG,使其电子浓度发生变化,因为电子在2DEG中是水平输运,其电子浓度的变化会通过横向过程影响到其他的量子点.这种影响一方面减小了量子点电子的隧穿势垒,另一方面对量子点电子来说是一种微扰,当其很强或处于某特定的状态时很容易导致量子点放电,进一步通过此量子点的电流和通过器件的总电流增加,继而影响更多的量子点,这种过程在器件中被不断放大最后导致所有的量子点完全放电.在实际的测试中这种过程发生很快,我们的设备不能分辨出电流变化的过程,只能探测到量子点放电之前和之后的电流

状态,所以在*I-V*曲线中给出了电流的直接跳跃线现象.

在其他的器件中我们也观察到了相同的现象,只是电流跳跃的位置和发生的概率略有不同.在我们分析中,由于声子的瓶颈效应,所以没有考虑电子与声子之间的相互作用这一机制.我们在高温下没有观察到类似的电流跳跃,表明这种电子弛豫过程与声子无关.另外,当器件偏压较大(大于2.0V)肖特基势垒中的电场对放电过程起主要作用的时候,我们没有观察到电流跳跃现象.这可能是因为2DEG的导电状态发生了变化,减弱了它与量子点电子的相互作用,关于这点还需要进一步的研究.

4 实验结果分析

本文分析了含量子点的肖特基势垒器件中出现的电流跳跃结构.这种电流跳跃起源于反向偏压肖特基势垒中所有量子点同时放电,简单的理论分析认为量子点的放电可以是一种相互关联的过程.量子点同时放电起源于量子点与2DEG的相互作用,当一个量子点放电时通过量子点和2DEG电流的变化会影响其他的量子点,从而促使其放电,这种过程在整个系统中放大导致所有的量子点放电.具体的放电过程还需要进一步深入地研究以确定这种现象发生所需要的条件以及这种现象发生前后系统的微观状态的变化、充电量子点的稳定性等.

- [1] Z. M. Wang *et al.*, *Acta Physica Sinica* **47**(1)(1998), 89 [in Chinese] 王志明等 *物理学报* **47**(1)(1998), 89].
- [2] X. L. Yuan *et al.*, *Acta Physica Sinica* **49**(10)(2000), 2037 [in Chinese] 袁晓利等 *物理学报* **49**(10)(2000), 2037].
- [3] Z. D. Lü *et al.*, *Acta Physica Sinica* **48**(4)(1999), 744 [in Chinese] 吕振东等 *物理学报* **48**(4)(1999), 744]; F. Gao *et al.*, *Chin. Phys.* **10**(10)(2001).
- [4] H. W. Li *et al.*, *Acta Physica Sinica* **50**(2)(2001), 74 [in Chinese] [李宏伟等 *物理学报* **50**(2)(2001), 74].
- [5] L. Gou, E. Leobandung, S. Chou, *Science* **175**(1997), 649.
- [6] F. Rana, S. Tiwari, J. J. Welser, *Superlattices and Microstructure* **23**(1998), 757.
- [7] T. Sakamoto, Y. Nakamura, S. Hwang, K. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**(1995), 4302.
- [8] A. Georges, Y. Meir, *Phys. Phys. Lett.* **82**(1999), 3508.
- [9] R. Egger, H. Grabert, A. Koutouza, H. Saleur, F. Siano, *Phys. Rev. Lett.* **84**(2000), 3683.
- [10] G. Medeiros-Ribeiro, F. G. Pikus, P. M. Petroff, A. L. Efros, *Phys. Rev.* **B55**(1997), 1568.
- [11] F. Rana, S. Tiwari, J. J. Welser, *Superlatt. Microstruct.* **23**(1998), 757.
- [12] E. Ribeiro, E. Müller, T. Heinzel, H. Auderset, K. Ensslin, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, *Phys. Rev.* **B58**(1998), 1506.
- [13] Qin Wang, N. Carlsson, P. Omling, L. Samuelson, W. Seifert, H. Q. Xu, *Appl. Phys. Lett.* **76**(2000), 1704.
- [14] S. Ishizaka, T. Ando, *Phys. Rev.* **B56**(1997), 15195.
- [15] R. Fleischmann, T. Geisel, R. Ketzmerick, G. Petschel, *Physica.* **D86**(1995), 171.
- [16] P. A. Lee, A. D. Stone, *Phys. Rev. Lett.* **55**(1985), 1622.
- [17] Y. Makhlin, G. Schön, A. Shnirman, *Phys. Rev. Lett.* **85**(2000), 4578.

CORRELATED DISCHARGING OF InAs QUANTUM DOTS IN METAL-SEMICONDUCTOR-METAL STRUCTURE^{*}

LI HONG-WEI WANG TAI-HONG

(*Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China*)

(Received 20 July 2001)

ABSTRACT

We report a correlated discharging process in current transport through metal-semiconductor-metal structures containing InAs self-assembled quantum dots. Due to the charged and discharged states of quantum dots, two different current states with a round hysteresis loop are usually observed in our structure. The transitions between the two current states are controlled by the applied voltages. Besides the normal charging and discharging processes, a correlated discharging is observed at 77K. Interactions that relate to the electrons in the quantum dots in the system are considered. The correlated discharging process is attributed to the interaction between electrons in the quantum dots and the conducting two-dimensional electron gas beneath the dot layer. Based on our analysis a simple picture of the relaxation process is given.

Keywords : correlated , self-assembled quantum dots (SAQD)

PACC : 7360L , 7340S

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 69925410 and 19904015).