

用格林函数法计算量子点中的应变分布*

郭汝海 时红艳 孙秀冬†

(哈尔滨工业大学应用物理系, 哈尔滨 150001)
(2003 年 11 月 3 日收到, 2004 年 1 月 24 日收到修改稿)

自组装量子点材料作为一种新型的光电材料无论在理论和实际应用都成为当今物理学界的研究热点. 由 GaAs 包围的 InAs 小岛, 由于较大的晶格失配 (≈ -0.067), 应变效应在量子点的形成过程中起主导作用. 大部分计算量子点结构应变分布的方法都是基于数值解法, 需要大量的计算工作. 给出用格林函数法推导各种常见形状量子点应变分布的解析表达式详细过程, 讨论了弹性各向异性和形状各向异性对量子点应变分布的影响程度. 结果表明对于不同形状量子点结构中主要部分的应变分布都是相似的, 流体静压变部分的特征值随量子点形状的变化不明显.

关键词: 自组装量子点, 格林函数, 应变分布

PACC: 7115P, 7280E, 7320D

1. 引 言

最近, 半导体量子点的研究已成为一个引人注目的领域^[1]. 从基础科学的角度来说, 量子点提供了一个研究三维限制的载流子引起的物理效应的机会. 从实用角度来说, 由于量子点可以做成高微分增益、低阈值电流和高特征温度的量子点激光器, 尤其对于新型光电器件有广阔的应用前景, 所以已成为当今物理学研究的热点之一^[2]. 半导体量子点的三维量子效应, 使电子运动的自由度降低, 导致体系的有效状态密度和电子的能量发生显著变化, 表现出一些新颖的物理特性, 如量子隧穿、库仑阻塞、非线性光学效应等. 这样就要求我们发展可靠、快速的方法模型化这些物理性质. 如在有效质量包络函数近似框架下计算量子点的电子结构^[3]. 在大多数情况下, 量子点的结构是由内部弹性应变场形成的, 它是来源于量子点和包围材料的晶格失配产生的^[4]. 因为应变本质上改变电子带的结构, 接着强烈地影响光电器件的性能, 所以对于这种应变场的性质的了解对新型器件构造是至关重要的^[5,6].

计算量子点内部应变场需要解具有一定形状量子点的三维弹性理论问题, 解这种问题的一般方法

为有限元法和原子力学的方法^[7,8], 但这些数值方法都需要大量而繁琐的计算工作. 本文介绍一种分析的方法——格林函数法计算量子点结构的应变分布, 可以快速地计算各种形状量子点的应变分布. 这种方法同时也特别适合作为计算量子点的电子性质的输入部分.

2. 模型描述

格林函数, 又称点源影响函数. 格林函数代表一个点源在一定的边界条件和(或)初始条件下所产生的场. 知道了点源的场, 就可以用叠加的方法计算出任意源所产生的场.

一个各向异性晶体受到作用于其表面的力 $P_j(\mathbf{r})$ 将产生变形, 以弹性位移场 $u_l(\mathbf{r})$ 表示, 位移可以用体材料的弹性理论的一系列平衡方程组确定, 利用相等的角标求和缩写法得

$$\nabla_k [\lambda_{iklm} \nabla_l u_m(\mathbf{r})] = 0. \quad (1)$$

这里假设了等于零的体力. 体力作用整个边界 S 给出了边界条件,

$$n_k(\mathbf{r}) [\lambda_{iklm} \nabla_l u_m(\mathbf{r})]_k = \sigma_k(\mathbf{r}), \quad (2)$$

这里 $n_k(\mathbf{r})$ 为晶体表面的外法线方向.

形式上, 可以通过一系列等价方程组的解来求

* 教育部优秀青年教师基金、黑龙江省留学回国基金(批准号 JL01C11)和国家自然科学基金(批准号 90201003)资助的课题.

† E-mail: xdsun@hit.edu.cn, 电话: 0451-86414129.

解方程 (1) 和边界条件 (2), 引入格林张量 $G_{ln}(\mathbf{r})$, \mathbf{r} 是从原点方向为 \mathbf{n} 的单位力在方向 l 上产生的位移, 对于无限大、各向异性的弹性介质, 格林张量元就是解下面的方程^[9]:

$$\lambda_{iklm} \frac{\partial^2 G_{ln}(\mathbf{r})}{\partial x_k \partial x_m} = -\delta(\mathbf{r}) \delta_m^l, \quad (3)$$

边界条件为

$$G_{ln}(\mathbf{r}) \rightarrow 0, \quad |\mathbf{r}| \rightarrow \infty,$$

这里 $\mathbf{r} = (x_1, x_2, x_3)$ 为空间坐标, λ_{iklm} 为弹性模量的张量元, 我们假设格林张量对于量子点和基质材料是一样的, 需要严格计算的地方, 可以把不同弹性模量当成是微扰. 为了求解方程 (1) 得到 $G_{ln}(\mathbf{r})$, 对 (1) 式进行傅里叶变换, 得到下面的线性方程:

$$\lambda_{iklm} \zeta_k \zeta_m \tilde{G}_{ln}(\zeta) = \frac{\delta_{in}^l}{(2\pi)^3}, \quad (4)$$

$\tilde{G}_{ln}(\zeta)$ 为格林张量的傅里叶变换, 单个量子点的广义位移可以由格林张量和量子点表面分布的应力的卷积来表达,

$$u_i^S(\mathbf{r}) = u_i^T \chi_{QD}(\mathbf{r}) + \int G_{in}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \sigma_{nk}^T dS'_k \quad (5)$$

这里 $\chi_{QD}(\mathbf{r})$ 为量子点的特征函数, 在点内它的值为 1, 在点外它的值为 0; $\sigma_{nk}^T = \lambda_{nkpr} \epsilon_{pr}^T, \sigma_{nk}^T, \epsilon_{pr}^T$ 和 u_i^T 分别为应力、应变和由于晶格失配的初始应力所产生的位移分量. 上角标 S 指单个量子点.

由弹性力学定义,

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} (u_{i,j} + u_{j,i}). \quad (6)$$

方程 (5) 的积分沿整个量子点的表面, 利用高斯理论和 (6) 式, 在单个量子点结构的应变张量由下式给出:

$$\epsilon_{ij}^S(\mathbf{r}) = \epsilon_{ij}^T \chi_{QD}(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} \int_{QD} \left[\frac{\partial^2 G_{in}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')}{\partial x_j \partial x_k} + \frac{\partial^2 G_{jn}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')}{\partial x_i \partial x_k} \right] \times \lambda_{nkpr} \epsilon_{pr}^T dV'. \quad (7)$$

这里积分是包含在整个的量子点体积内, 利用卷积理论, 并采用傅里叶变换, 得

$$\begin{aligned} \tilde{\epsilon}_{ij}^S &= \tilde{\epsilon}_{ij}^T \tilde{\chi}_{QD}(\zeta) - \frac{(2\pi)^3}{2} \{ \zeta_i \tilde{G}_{jn}(\zeta) + \zeta_j \tilde{G}_{in}(\zeta) \} \\ &\times \lambda_{nkpr} \epsilon_{pr}^T \tilde{\chi}_{QD}(\zeta). \end{aligned} \quad (8)$$

$\tilde{\chi}_{QD}(\zeta)$ 为量子点特征函数的傅里叶变换. 方程 (8) 给出了任意形状单个量子点的应变张量的傅里叶变换的普遍表达式, 它对于立方对称或其他的对称结构都是实用的. 我们可以注意到对于不同形状

的量子点在方程 (8) 中仅仅作为特征函数的傅里叶变换出现.

对于立方对称的量子点的应变张量的傅里叶变换的最终公式得^[10]

$$\begin{aligned} \tilde{\epsilon}_{ij}^S(\zeta) &= \epsilon_0 \tilde{\chi}_{QD}(\zeta) \\ &\times \left\{ \delta_{ij} - \frac{(C_{11} + 2C_{12}) \zeta_i \zeta_j / \zeta^2}{1 + (C_{12} + C_{44}) \sum_{p=1}^3 \frac{\zeta_p^2}{C_{44} \zeta^2 + C_{an} \zeta_p^2}} \right. \\ &\times \left. \frac{1}{2} \left[\frac{1}{C_{44} + C_{an} \zeta_i^2 / \zeta^2} + \frac{1}{C_{44} + C_{an} \zeta_j^2 / \zeta^2} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (9)$$

这里 C_{11}, C_{12}, C_{44} 为弹性模量, 并且 $C_{an} = C_{11} - C_{12}$

$- 2C_{44}$ 为描述张量中各向异性的部分, $\epsilon_0 = \frac{a_s - a_{QD}}{a_{QD}}$

为初始应变, a_s 和 a_{QD} 为衬底和量子点材料的晶格常数. 如果各向同性, 则 $C_{an} = 0$, 则弹性模量适用于各向同性的 Lamé 常数 $C_{12} = \lambda, C_{44} = \mu$, 这个公式和方程 (8) 给出了以傅里叶级数形式表示的, 包含任意形状的量子点结构的应变分布的分析表达式. 量子点的形状在方程 (9) 中只表现为量子点特征函数的傅里叶变换 $\tilde{\chi}_{QD}(\zeta)$, 各种形状的 $\tilde{\chi}_{QD}(\zeta)$ 的分析表达式将在下面给出. 在方程 (9) 中考虑各向同性的近似, 令 $C_{an} = 0$, 得到

$$\tilde{\epsilon}_{ij}^{iso}(\zeta) = \epsilon_0 \tilde{\chi}_{QD}(\zeta) \left(\delta_{ij} - \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + 2\mu} \frac{\zeta_i \zeta_j}{\zeta^2} \right). \quad (10)$$

从这个方程, 可以分别得到应变张量的流体静应变的部分, $\epsilon_{ii}^{iso} \equiv \epsilon_h$, 和双轴应变部分, $\epsilon_{ax} = \epsilon_{zz} - (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})/2$, 它们各自对应于电子的势阱形状和轻、重空穴态的分裂, 在各向同性近似的条件下, 它在量子点内部为常数, 外部为零, 表示如下:

$$\tilde{\epsilon}_{ii}^{iso} = \epsilon_0 \frac{4\mu}{\lambda + 2\mu} \chi_{QD}(\zeta), \quad (11)$$

$$\tilde{\epsilon}_{ax}^{iso} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \tilde{\chi}_{QD}(\zeta) \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + 2\mu} \left(1 - \frac{3\zeta_z^2}{\zeta^2} \right). \quad (12)$$

对于球体、立方体和金字塔这三种常见的量子点形状, 特征函数的傅里叶变换 $\tilde{\chi}_{QD}(\zeta)$ 如下^[10, 11],

$$\tilde{\chi}_{QD}^{sph}(\zeta) = \frac{4\pi}{\zeta} \left[\frac{\sin(\zeta R)}{\zeta^2} - \frac{R \cos(\zeta R)}{\zeta} \right], \quad (13)$$

$$\tilde{\chi}_{QD}^{cub}(\zeta) = \frac{8}{\zeta_1 \zeta_2 \zeta_3} \text{si}(\zeta_1 a_1/2) \text{si}(\zeta_2 a_2/2) \text{si}(\zeta_3 a_3/2), \quad (14)$$

$$\begin{aligned} \tilde{\chi}_{QD}^{sym}(\zeta) = & -\frac{e^{-ih\zeta_3}}{\zeta_1\zeta_2} \left\{ E\left(h, \zeta_3 - \frac{L_x}{2h}\zeta_1 - \frac{L_y}{2h}\zeta_2 \right) \right. \\ & - E\left(h, \zeta_3 - \frac{L_x}{2h}\zeta_1 + \frac{L_y}{2h}\zeta_2 \right) \\ & - E\left(h, \zeta_3 + \frac{L_x}{2h}\zeta_1 - \frac{L_y}{2h}\zeta_2 \right) \\ & \left. + E\left(h, \zeta_3 + \frac{L_x}{2h}\zeta_1 + \frac{L_y}{2h}\zeta_2 \right) \right\}, \quad (15) \end{aligned}$$

这里 R 为球体的半径, a_1, a_2 和 a_3 为立方体的边长, L_x, L_y 和 h 分别为金字塔的两个底边长和高度. 这里

$$E(a, ix) = (e^{iax} - 1)ix. \quad (16)$$

3. 结果与讨论

Andreev 等人^[10]基于 Keyes 标量定则^[12]提出对于系统中的所有材料,最好都选择基质材料的弹性常数.因为在失配应变弛豫之前,所有材料具有相同的晶格距离.因此下面的所有计算都是假设量子点内的和外的材料弹性常数相等,不同的弹性模量当作微扰来处理.在这种情况下,弹性张量的傅里叶变换有如下形式, $\tilde{\epsilon}_{ij} = \tilde{\epsilon}_{ij}^{(0)} + \tilde{\epsilon}_{ij}^{(1)} + \tilde{\epsilon}_{ij}^{(2)} + \dots$, $\tilde{\epsilon}_{ij}^{(0)}$ 是利用势垒材料的弹性常数计算而得的弹性张量, $\tilde{\epsilon}_{ij}^{(N)} \propto \delta\lambda^N$ 为微扰序列的第 N 阶修正,而 $\delta\lambda \sim (\delta\lambda)_{iklm} \equiv \lambda_{iklm}^{QD} - \lambda_{iklm}^M$ 为量子点和势垒材料之间弹性常数的差值. N 阶修正项, $\tilde{\epsilon}_{ij}^{(N)}$, 可以用 $N-1$ 阶修正项和特征函数 $\tilde{\chi}_{QD}$ 的卷积得到,这样就提供了一种方便、快捷的方法计算指定精度的弹性应变.

表 1 一些 III-V 半导体的弹性模量(单位 10^{11} Pa), C_{an} 为弹性各向异性^[13]

材料	C_{11}	C_{12}	C_{44}	C_{an}
InP	1.02	0.58	0.46	-0.48
InAs	0.83	0.45	0.40	-0.42
InSb	0.66	0.36	0.30	-0.30
GaSb	0.88	0.40	0.43	-0.38
GaP	1.41	0.62	0.70	-0.61
GaAs	1.18	0.54	0.59	-0.54

对于立方晶体,弹性各向异性的程度用各向异性的部分,弹性张量 $C_{an} = C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$ 的大小来描述.如果 $C_{an} = 0$,就简化为各向同性的近似.而如果它的大小和其他弹性模量相近,弹性性质就表现

为强烈的各向异性.表 1 给出了一些 III-V 族两种元素组成的弹性常数值.从这个表中可以看出,在 III-V 半导体化合物中各向异性程度很强,因为弹性张量的各向异性部分 $|C_{an}| \sim C_{12} \sim C_{44}$.

这也表现在有效泊松比强烈的依赖于量子点的形状和方向^[14],例如有效泊松比从(001)方向的 $\nu_{eff} \approx 1/3$ 到(111)方向的 $\nu_{eff} \approx 1/5$ 变化,这种变化将导致应变极大依赖于空间方向.应变量子阱很好地说明了这种情况,应变在正交于阱平面的方向最强,这种应变效应改变了束缚在阱内电子和空穴的能级位置.

因此我们可以很自然地想到,III-V 族化合物的各向异性是确定量子点结构中应变分布的一个重要因素.然而,要说明的是这并不是一个普遍的情况.在大多数情况下,弹性的各向异性只给出了各向同性近似结果的一个小的修正.下面将定性地解释这个结论.对比量子阱结构,量子点中的应变分布由两个物理因素决定:第一,量子点形状的对称程度;第二,弹性性质的各向异性.

因此我们分成以下三种不同的情况加以讨论: 1)量子点的形状对称高于弹性性质的立方对称; 2)量子点形状立方对称; 3)量子点的形状对称低于弹性性质的立方对称.对于第一种情况,应变分布中的各向异性主要由弹性性质的各向异性引起.因此,各向同性和各向异性的模型可以给出不同的结果.另一方面,大多数情况下,当量子点形状的对称等于或低于立方对称,应变分布的各向异性则主要是形状的各向异性.因此,各向同性假设能给出完全各向异性模型的主要特点.为了说明这一点,我们计算了球

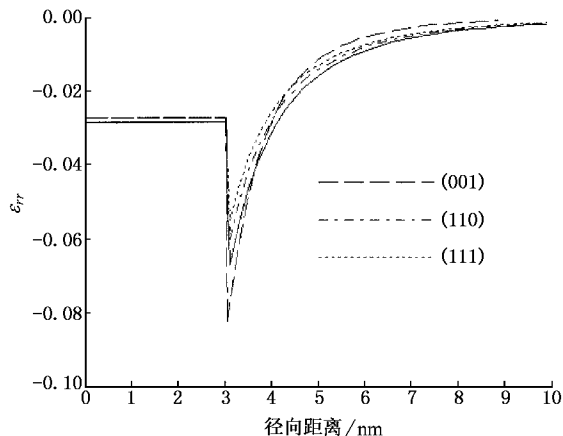


图 1 球形量子点不同方向的径向应变张量部分,各向同性(实线),各向异性(虚线和点线);量子点的半径 3nm,坐标原点在量子点中心

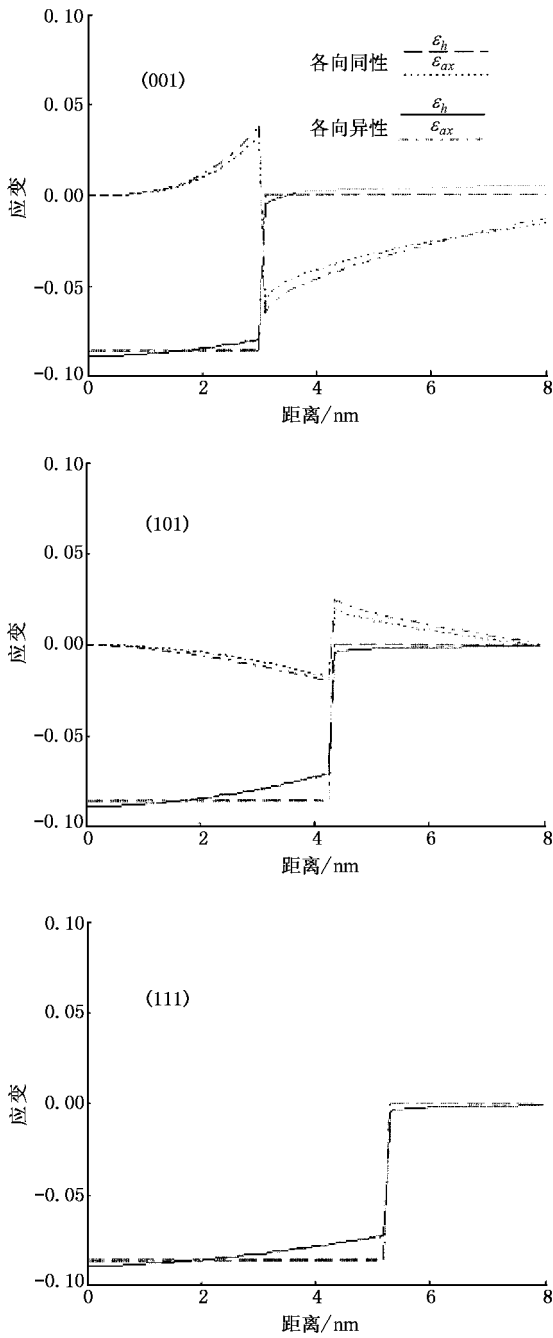


图2 立方体量子点流体静应变 ϵ_h 和双轴应变 ϵ_{ax} 沿着选定方向变化曲线,边长为 6nm,坐标原点在量子点中心

形、立方体和金字塔的应变分布. GaAs 的弹性常数在以下的计算中取表 1 的值. 失配应变 $\epsilon_0 = -0.067$, 对应于 InAs 量子点包含在 GaAs 基质中, 并且对于各向同性计算, $C_{12} = 0.54 \times 10^{11}$ Pa 和 $C_{44} = 0.59 \times 10^{11}$ Pa 而 $C_{in} = 0$.

对于各向同性的球形量子点的应变分布, 由弹性性质的立方对称引起的各向异性的大小可以用球形坐标下的应变张量 ϵ_{rr} 表示, 图 1 给出了它的三个

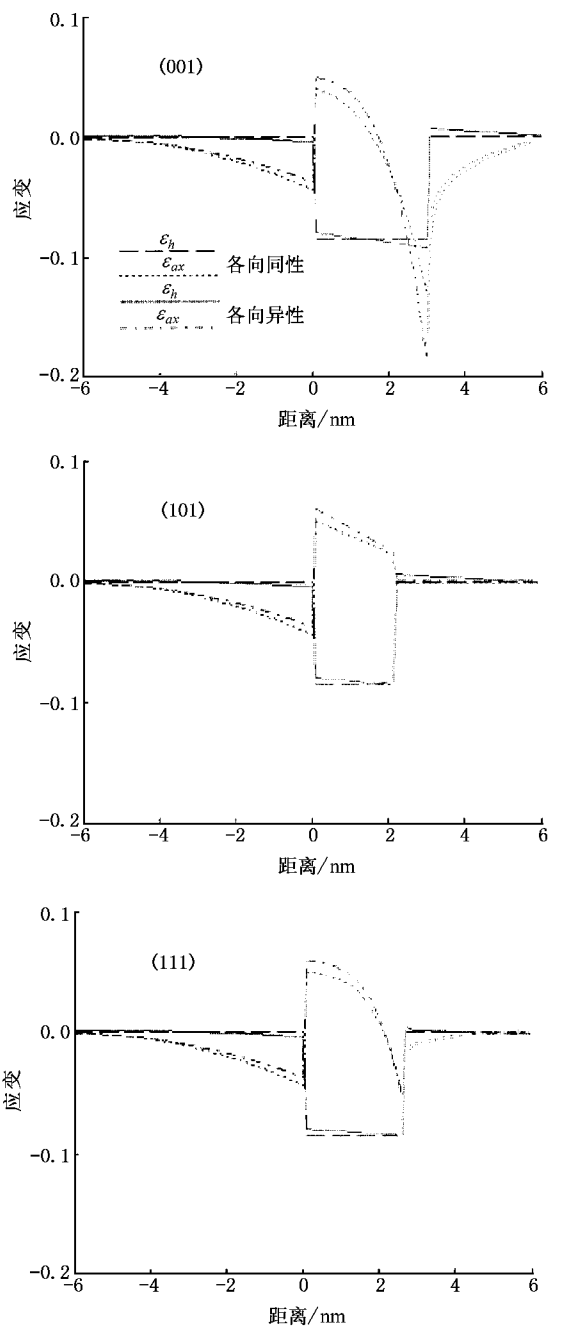


图3 金字塔量子点流体静应变 ϵ_h 和双轴应变 ϵ_{ax} 沿着选定方向变化曲线,底边长为 6nm,高为 3nm,坐标原点在量子点底座中心

方向的曲线. 在量子点中各向同性和各向异性模型给出了相似的常数应变值, 而量子点外不同. 沿着 (001) 方向, 各向异性模型大于各向同性给出的 ϵ_{rr} 的变化值, 相反的情况出现在 (111) 方向, 而沿着 (110) 方向, 两个模型的结果接近相等. 因此对于一个球形的量子点, 它内部弹性的各向异性的影响非常小, 而点外的这种影响在 (100) 方向较大, 在 (110)

方向较小,可以看出在量子点外各向同性模型给出了应变分布在各个方向的平均值.

立方量子点的各向同性和各向异性模型的对比在图 2 中给出.这里量子点的对称性和弹性性质的对称性是相同的,因此弹性各向异性的影响远小于球形量子点.它们最大的不同之处出现在(001)方向和球形量子点情况相同.

对于金字塔形状,量子点形状的对称性小于弹性性质的立方对称性.我们可以再一次看到各向同性和各向异性模型的结果无论是定性还是定量都很相似.对比于球形量子点,两个模型的不同之处在量子点内部表现得更为明显.

前面已经给出,在各向同性的限制下,流体静压力部分 $\epsilon_h = \epsilon_{ii}$,在量子点内部为常数,在外面为零.对于各向异性模型, ϵ_h 随空间变化不明显(图 2 和图 3).说明 ϵ_h 对位置的依赖关系很弱,可以得出结论弹性的各向异性对量子点应变分布的影响相对较小.

4. 结 论

本文用一种基于格林函数的方法来计算任意形状量子点的应变分布.这种方法的优点是它能得出

应变分布傅里叶形式的分析表达式,因此它的计算速度优于其他的数值方法.它的另一个优点就是量子点形状仅仅通过量子点的特征函数的傅里叶变换加入.这种方法也适合计算量子点的电子性质的输入部分.量子点中大部分限制态能量的计算都是用包络函数方法,利用基于平面波态计算波函数.以前的研究通常包括两个大型的积分步骤计算任意平面波态对关联的矩阵元素.首先,实空间应变场可以通过结构精确计算出来,这个实空间应变场作为第二步积分步骤的输入以确定应变相关的平面波矩阵元素.对比我们的方法,利用得出的分析表达式,每一个矩阵元都可以由分析表达式确定,正比于本文介绍的傅里叶序列的单个项.

对比简化的各向同性和各向异性的模型,两个模型都给出了非常相近的结果,弹性性质由立方对称性,然而在大多数情况下,量子点形状拥有更低的对称度.因此对于不同形状的量子点,应变分布的各向异性主要是由点形状的各向异性决定的,而不是介质的弹性性质的各向异性决定的.但是随着测量技术和理论研究水平的提高,我们能更加准确地确定量子点形状和尺寸的大小,这时各向异性的计算结果就能够给出精确的应变分布.

-
- [1] Marin J Y and Bastard G 1994 *Solid State Commun.* **91** 39
 - [2] Bimberg D, Grundmann M and Ledentsov N N 1998 *Quantum Dot Heterostructures* (John Wiley & Sons, UK)
 - [3] Feng D H, Jia T Q and Xu Z Z 2003 *Chin. Phys.* **9** 1016
 - [4] Grundmann M, Stier O and Bimberg D 1995 *Phys. Rev. B* **54** 11969
 - [5] O'Reilly E P 1989 *Semicond. Sci. Technol.* **4** 121
 - [6] O'Reilly E P and Adams A R 1994 *IEEE J. Quantum Electron.* **30** 366
 - [7] Benabbas T, Francois P, Androusi Y and Lefebvre A 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 2763
 - [8] Cusack M A, Briddon P R and Jaros M 1996 *Phys. Rev. B* **54** R2300
 - [9] Lifshits I M and Rosentsverg L N 1947 *Zh. Eks. Teor. Fiz.* **17** 9 (in Russian) [*Sov. Phys. JETP*]
 - [10] Andreev A D, Downes J R, Faux D A and O'Reilly E P 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 297
 - [11] Jiang H and Singh J 1997 *Phys. Rev. B* **56** 4696
 - [12] Keyes R W 1962 *J. Appl. Phys.* **33** 3371
 - [13] Krijn M P C M 1991 *Semicond. Sci. Technol.* **6** 27
 - [14] Davies J H 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 1358

The calculation of strain distribution in quantum dots^{*} with Green method

Guo Ru-Hai Shi Hong-Yan Sun Xiu-Dong

(*Department of Applied Physics , Harbin Institute of Technology , Harbin 150001 , China*)

(Received 3 November 2003 ; revised manuscript received 24 January 2004)

Abstract

There is considerable interest in the study of self-assembled quantum dots as one of the new optoelectronic materials in the field of physics. It is interesting in theory , and also applications. In this article , we consider the InAs islands buried in GaAs , because of large lattice mismatch (≈ -0.067) , which makes strain effect to be the main factor in the formation of quantum dots. Most methods for calculations of strain distribution are based on the numerical solution of quantum dots structures , which need heavy calculations work. We present a detailed process to derive an analytical formula for the strain distribution in some familiar shapes of quantum dots with Green function method , and discuss their influence on the strain distribution in quantum dots by taking into account the anisotropy of elastic properties and shape. The results showed that the strain distributions in the major part of the quantum dot structure are very similar for different shapes and that the characteristic value of the hydrostatic strain component depends only weakly on variation of the shape of quantum dots.

Keywords : self-assembled quantum dots , Green function , strain distribution

PACC : 7115P , 7280E , 7320D

^{*} Project supported by the Ministry of Education for Distinguished Young Teacher , the Foundation of Heilongjiang Province for the Returned Overseas Scholars (Grant No. LC01C11) , and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 90201003) .