

隔离层厚度和盖层厚度对 InAs/GaAs 量子点 应变分布和发射波长的影响^{*}

刘玉敏^{1,2)†} 俞重远^{1,2)} 任晓敏²⁾

1) 北京邮电大学 理学院 北京 100876)

2) 光通信与光波技术教育部重点实验室(北京邮电大学) 北京 100876)

(2008 年 5 月 31 日收到 2008 年 7 月 1 日收到修改稿)

分析了量子点盖层生长过程中隔层厚度对应变分布的影响,指出隔层材料的纵向晶格常数与量子点材料的纵向晶格常数对应变分布具有重要意义.定性说明了应变因素在隔离层生长过程中对量子点高度塌陷产生的影响.讨论了当隔离层顶面与量子点高度持平后,增加盖层厚度对应变分布的影响.基于变形势理论,讨论了上述几何参数的变化对发光波长的影响,并与实验结果进行了对比.结果表明,在量子点加盖过程中,应变因素对其形貌和发光特性具有重要作用,以应变工程为基础的发射波长调控是拓展量子点波长发射范围的有效途径.

关键词:应变工程,半导体量子点,隔离层,盖层

PACC: 0365, 2110D

1. 引言

三维受限的量子点系统与传统的体材料、一维受限量子阱材料以及二维受限量子线材料相比具有独特的类原子电子能态特性^[1-3](在矩阵材料的宽带隙内具有离散的电子能级),使其在光电子器件、微电子器件和量子电子器件领域引起广泛关注^[4-6].自组织生长量子材料是目前量子材料制备的主要途径,其中应变自组织量子点材料因其在发光器件和量子电子学器件领域具有重要的应用前景而成为研究的热点领域.应变在应变自组织生长量子点材料过程中具有十分重要意义,这主要表现在两个方面:第一,应变是量子点自组织生长的主要驱动力,了解应变分布,才能更好的理解量子点生长过程的自组织机理;第二,应变分布能够对载流子引起附加的限制势,从而对量子点的电子结构和发光波长产生影响^[7].近年来基于应变工程的手段实现量子点发光波长的调控被国内外多个研究组广泛关注,特别是拓展基于 GaAs 基量子点材料的发光波长到光纤通信用 1.3 μm 到 1.5 μm . InGaAs 或 GaAlAs 作为应变减少层填充隔离层是应变工程常见的方

法,可以实现 1.3 μm 发射^[8,9],另外 GaN 应变补偿也可以改善量子点形态分布和发光质量^[10].最近,国内半导体研究所报道了 GaAs 基量子点采用 GaSb 材料及其合金作为应变缓冲层实现 1.5 μm 的长波长发射^[11].

本文采用有限元法计算了量子点的应变分布,侧重讨论在量子点盖层生长过程中,隔离层和盖层厚度对量子点应变分布和发光波长的影响.量子点加盖前后,形态和发光特性的变化尽管国内外已经有实验报道^[12],但缺乏理论分析,特别是从应变角度分析量子点加盖后对应变分布,以及应变对量子点形态和发光波长的影响.本文的理论分析和计算结果表明,当量子点间距较大时(忽略量子点之间的应变耦合和波函数耦合作用),隔离层区域材料的晶格失配对量子点应变分布变化影响很大,这也验证了应变减少层一般填充在隔离区的原因,但隔离层厚度对发光波长基本没有影响,盖层厚度对应变分布和发光波长都有一定影响.

2. 物理模型

实验观测到的量子点形状与生长条件密切相

^{*} 国家重点基础研究发展计划(973 项目)(批准号:2003CB314901),国家自然科学基金(批准号:60644004)和高校创新引智计划项目(批准号:B07005)资助的课题.

[†] E-mail: liuyuminhqy@263.net

关,常见的有金字塔形状、透镜形状、圆柱形状和平顶金字塔形状等.我们采用平顶金字塔形状量子点为研究对象,为了减少计算量,将其简化为平顶圆锥形状,这样可以采用轴对称模型,从而大大简化计算量.应变分布计算的具体细节可以参看文献[13—17].这里给出简单描述.对于立方晶体,独立的弹性劲度系数有三个,可将二阶应力和应变张量写成如下的矢量形式:

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \partial u / \partial x \\ \partial v / \partial y \\ \partial w / \partial z \\ (\partial u / \partial y + \partial v / \partial x) / 2 \\ (\partial v / \partial z + \partial w / \partial y) / 2 \\ (\partial u / \partial z + \partial w / \partial x) / 2 \end{pmatrix},$$

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{xy} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \end{pmatrix} = D(\epsilon - \epsilon_0) + \sigma_0, \quad (1)$$

式中 u, v, w 分别表示在选定坐标位置在 x, y 和 z 方向的位移.不加说明,在以后讨论中,应变的定义都表示为位移的一阶偏导数. $\epsilon_{xx}, \epsilon_{yy}, \epsilon_{zz}$ 分别表示 x, y 和 z 方向的正应变, $\epsilon_{xy}, \epsilon_{yz}, \epsilon_{zx}$ 分别表示在 xy, yz, zx 平面的切应变.同理应力分量 $\sigma_{ij} (i, j \in x, y, z)$ 也表示同样的物理意义.联系材料应力和应变关系的 D 矩阵表示为

$$D = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} \end{pmatrix}. \quad (2)$$

根据连续弹性理论,求解平衡时材料的应变分布转化为求系统的应变能最小问题.体系的应变能可以表示为

$$U = \frac{1}{2} \iiint \sigma'(\epsilon - \epsilon_0) dx dy dz. \quad (3)$$

(2)(3)式中 ϵ_0 和 σ_0 分别表示体系的初始应变以及初始应力.对于量子点体系,量子点内部的初始应变为晶格失配的绝对值,晶格失配表示为 $\epsilon_0 = \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = (a_{\text{dot}} - a_{\text{sub}}) / a_{\text{sub}}$, 其中 a_{dot} 表示量子点

材料在非应变状态下的晶格常数, a_{sub} 表示衬底材料在非应变状态下的晶格常数.衬底和盖层材料的初始应变为 0.整个材料体系的初始应力均为 0.因此初始应变和应力可以看做是体系的初始载荷.将(3)式展开得

$$U = \frac{1}{2} \iiint [C_{11}(\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + C_{12}(\epsilon_{xx}\epsilon_{yy} + \epsilon_{yy}\epsilon_{zz} + \epsilon_{zz}\epsilon_{xx}) + 2C_{44}(\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{zx}^2) - 2\epsilon_0(C_{11}/2 + C_{12})\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) + 3\epsilon_0^2(C_{11}/2 + C_{12})] dx dy dz. \quad (4)$$

将(1)式代入(4)式求解体系的最小应变能,就可以得到空间坐标的位移情况,进一步根据位移应变的一阶导数关系,就可以计算应变分布.常见的数值方法有两种,一种为有限元法,一种为有限差分法.无论哪一种方法弹性能的最小化问题首先转化为求系统的线性方程,并使问题的解满足

$$\frac{dU}{du(i, j, k)} = \frac{dU}{dv(i, j, k)} = \frac{dU}{dw(i, j, k)} = 0, \quad (5)$$

其中 i, j, k 代表体系 x, y, z 空间位置的坐标.首先将体系按立方体形状使空间坐标离散化,这样晶体在宏观上仍能保持立方对称,整个坐标系包含 $N = N_x N_y N_z$ 个空间节点.在 x, y, z 轴方向的离散化节点个数分别为 N_x, N_y, N_z .每个节点有 3 个位移数据,分别用 u, v, w 表示在该节点位置处 x, y 和 z 方

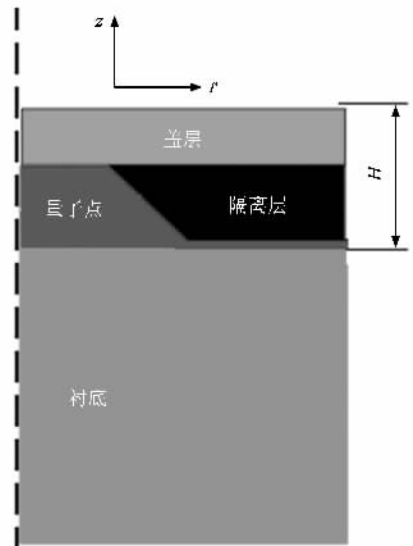


图1 量子点的几何模型

向的位移,因此,整个体系有 $3N$ 个位移数据.利用 $3N$ 个未知位移数据代入应变定义式,得到每个节点的位移,其中偏导数利用一阶差分表示.将位移数据代入(4)式求积分,即可得到体系的弹性应变能.通过求体系的最小应变能来求得 $3N$ 个位移矢量,最后求得体系的应变能分布.

量子点的几何形状如图 1 所示,参数如下:量子

表 1 InAs/GaAs 量子点材料的弹性常数、变形势常数以及与晶格常数

材料	C_{11}/GPa	C_{12}/GPa	C_{44}/GPa	a_c/eV	a_v/eV	b/eV	晶格常数 a/nm
GaAs	83.4	45.4	39.5	1.00	-5.08	-1.8	0.565325
InAs	118.8	53.8	59.4	1.16	-7.17	-1.7	0.605830

3. 结果与讨论

我们的重点是讨论在各种情况下,应变分量在中心轴路径的分布情况.由于采用轴对称模型,在中心轴路径上,满足 $\epsilon_{rr} = \epsilon_{\phi\phi}$,中心轴路径定义为从衬底到量子点盖层沿模型对称轴的一条直线,如图 1 中虚线所示.流体静应变和双轴应变对于导带和价带载流子限制势具有重要的影响,根据变形势理论^[16],流体静应变可以表示为 $\epsilon_{hy} = \epsilon_{rr} + \epsilon_{zz} + \epsilon_{\phi\phi}$,双轴应变表示为 $\epsilon_{bi} = 2\epsilon_{zz} - (\epsilon_{rr} + \epsilon_{\phi\phi})$.应变对导带边和重空穴带边的影响分别表示为 $\Delta E_c^{hy} = a_c \epsilon_{hyd}$ 和 $\Delta E_{hh} = a_v \epsilon_{hyd} - 0.5b\epsilon_{bi}$,计算用到的材料参数参考表 1.下面分别讨论量子点隔离层厚度和盖层厚度变化时对应变分布和带边产生的影响.隔离层材料为从浸润层开始直到与量子点高度持平的部分,在分析隔离层厚度的影响时,量子点没有被完全覆盖.盖层材料为从量子点被完全覆盖之后的部分,盖层厚度的增加,不再影响量子点的埋藏环境,具体可参考图 1.

3.1. 隔离层厚度的影响

为了定量分析隔离层厚度对应变分布的影响,图 2 给出了没有隔离层 ($H = 0$) 以及隔离层厚度逐渐增加到等于量子点高度时对应的变双轴应变、流体静应、导带边和重空穴带的带边沿中心轴路径的变化情况.

如图 3(a) 所示,在量子点内部,双轴应变随隔离层厚度增加而变大,另外,随着隔离层厚度的增加,双轴应变在量子点内部从底部到顶部由线性变化关系演变为非线性变化关系.在量子点底部双轴应变最大,在量子点顶部双轴应变分量最小,这说明量子

点底面半径为 10 nm,量子点高度为 4.5 nm,浸润层高度为 0.3 nm,量子点顶面半径为 5 nm,衬底足够厚.本文设置为 40 nm,水平尺度为 30 nm,确保近邻量子点的影响可以忽略(应变耦合和电子波函数耦合效应可以忽略).不加说明量子点和浸润层材料均为 InAs,其他部分为 GaAs 材料.InAs/GaAs 量子点的几何模型如图 1 所示.

点在顶部有很好的弛豫效果,而在量子点底部弛豫程度明显变小.随着隔离层厚度的增加,量子点弛豫程度减弱,更多的应变储存在量子点内部.图 3(b) 给出了流体静应变随隔离层厚度的变化关系,在量子点内部应变分布的变化趋势与双轴应变相同.通常,材料的应变状态用流体静应变表示,流体静应变大于零,材料处于张应变状态,流体静应变小于零,材料处于压缩应变状态.从图 3(b) 可以看出,量子点处于压缩应变状态.随着隔离层厚度的增加,量子点的压缩应变程度逐渐增强.这一点可以从晶格失配的角度加以说明:当隔离层厚度为零时,量子点表面完全暴露,只有底部与浸润层接触.假定材料保持共格生长,没有位错以及应变弛豫,这时应变能只能在量子点和浸润层内协调.量子点和浸润层材料承受由于晶格失配导致的双轴压缩应变,两个水平方向的应变分量相等,大小为材料的晶格失配.此时量子点材料水平方向的晶格常数与衬底晶格常数相同.但在沿量子点生长方向,由于弹性力学的泊松效应,量子点材料在该方向承受张应变,因此纵向晶格常数大于水平方向的晶格常数,也就是大于衬底材料在无应变情况下的晶格常数.

随着隔离层生长,隔离层材料与衬底材料为同一种材料,因此在水平方向与浸润层材料不存在晶格失配,但在纵向方向,量子点材料与隔离层接触界面存在晶格失配,且量子点晶格常数大于隔离层晶格常数,因此隔离层材料的引入,使得量子点纵向晶格常数变小,量子点与隔离层接触界面将承受来自隔离层的纵向压缩应变,这一点可以清楚的从图 3(b) 中量子点内部 ϵ_{zz} 正应变色带分布中看出.随着隔离层厚度的增加,量子点承受的压缩应变也变大.

图 3(c) 和 (d) 分别给出了导带边和重空穴带边随隔离层厚度的变化关系,可以看出,受流体静应变

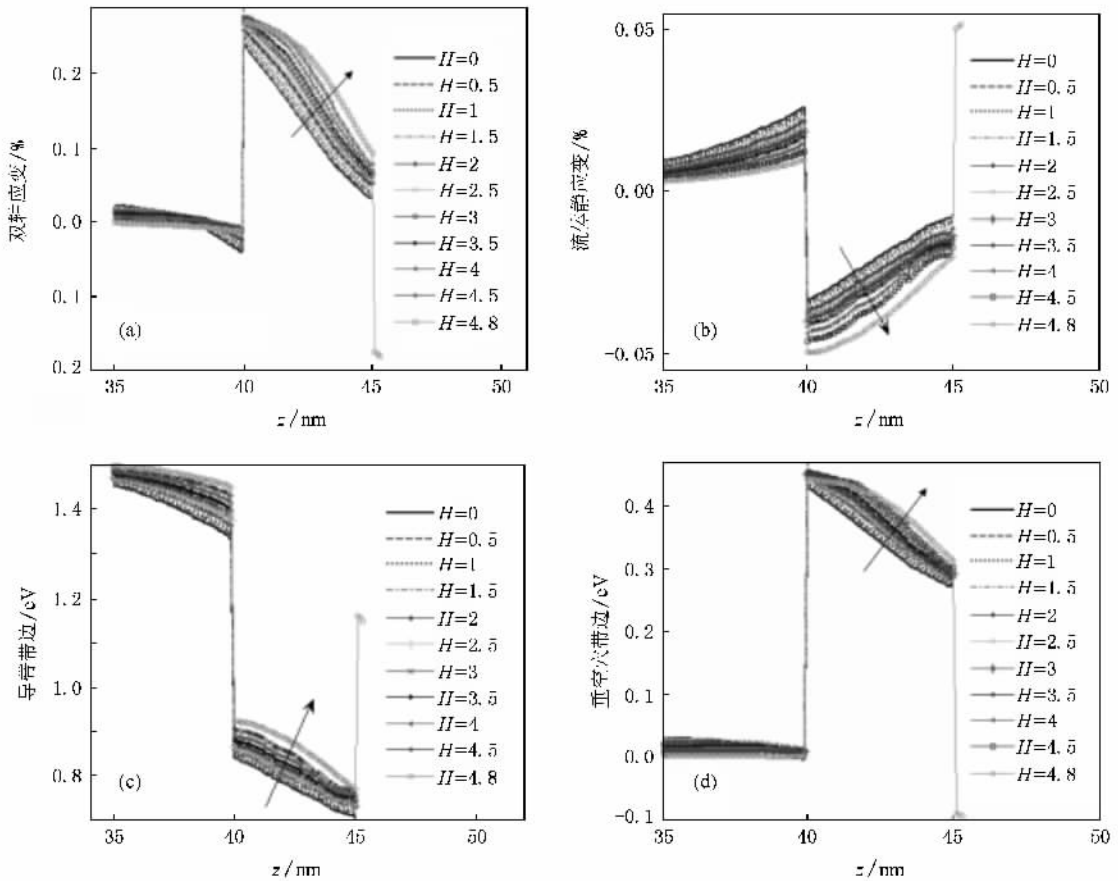


图2 沿量子点中心轴路径双轴应变(a)、流体静应变(b)、导带边(c)和重空穴带边(d)随隔离层厚度的变化

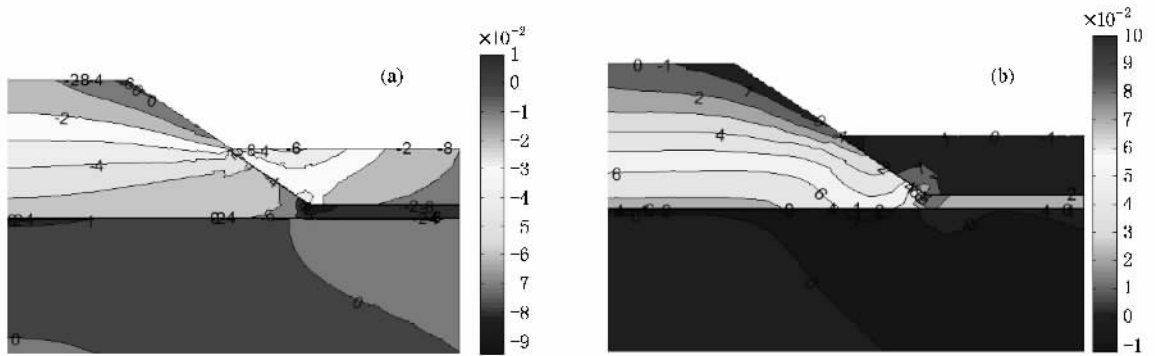


图3 隔离层厚度为 2.5 nm 时量子点及附近材料的 ϵ_{xx} 正应变(a)和 ϵ_{zz} 正应变分布(b)

的影响,量子点内部,导带边能量变大.重空穴受流体静应变和双轴应变的综合影响,在量子点内部,重空穴带边能量也变大.综合看来,在量子点内部,有效的带隙宽度受隔离层厚度的影响很小.受应变的影响,带变在量子点内部并不平坦,导致电子在量子点顶部的概率密度大,而空穴在量子点底部的概率

密度大.由量子态跃迁理论可知,这样的波函数分布将导致偶极跃迁矩阵元较小,光吸收和发射效率低,另外,由于隔离层导致量子点承受纵向压缩,使得量子点高度有下降的趋势,实际塌陷程度与具体的热力学和动力学生长条件有关^[18].这与实验观测得到的量子点形态在隔离层生长过程中的变化一致,另

外量子点高度塌陷将导致发光波长蓝移^[12].

3.2. 盖层厚度的影响

当隔离层表面与量子点高度持平时,对于平顶量子点,材料继续生长将增加 GaAs 盖层与量子点接触面积,考虑到晶格失配因素,盖层的作用将进一步增强量子点的压缩,使得量子点内部的应变弛豫程度进一步减小,这一点可以从流体静应变随盖层厚度的变化得以说明,如图 4(b)所示.当盖层厚度约为量子点高度的 2 倍时,量子点压缩应变状态接近饱和,继续增加盖层厚度,对量子点内部承受的压缩应变不再产生明显影响.通过以上分析可以看出,隔离层和盖层对量子点材料作用的相同之处是,增加厚度,都引起压缩应变的增加,导致量子点内部流体静应变强度变大.不同之处在于,盖层的作用是,进一步增强的是水平方向的压缩应变.同时增加沿生长方向的张应变.隔离层的则相反,隔离层在纵向方向与量子点接触,对量子点在纵向方向施加压应变,引

起纵向方向张应变减小,同时水平方向压应变减弱.总体上,如果用流体静应变表示量子点的应变状态,无论是隔离层厚度还是盖层厚度的增加,量子点呈现压缩增强效果.双轴应变随盖层厚度的关系如图 4(a)所示,由于盖层的作用使纵向张应变和横向压应变加强,压应变占主要因素,根据双轴应变的定义,很容易得知,随着盖层厚度的增加,双轴应变将减小.与流体静应变相同,当盖层厚度约为量子点高度的 2 倍时,双轴应变接近最小值,继续增加盖层厚度,量子点内部的双轴应变不再产生明显变化.图 4(c)和(d)分别给出了量子点导带边和重空穴带边随盖层厚度的变化关系,可以看出,量子点导带边能量增加,重空穴带边能量下降,因此,在量子点区域,有效的带隙宽度变大,因此盖层厚度的增加,将引起明显的发光波长蓝移,这与实验观测一致.另外,随着盖层厚度的增加,导带边和重空穴带边在量子点内部逐渐变得较为平坦,因此电子和重空穴的分布函数主要在量子点中心,随着盖层厚度的增加,其发光和吸收效率将增强,这也与实验观测一致^[12,19,20].

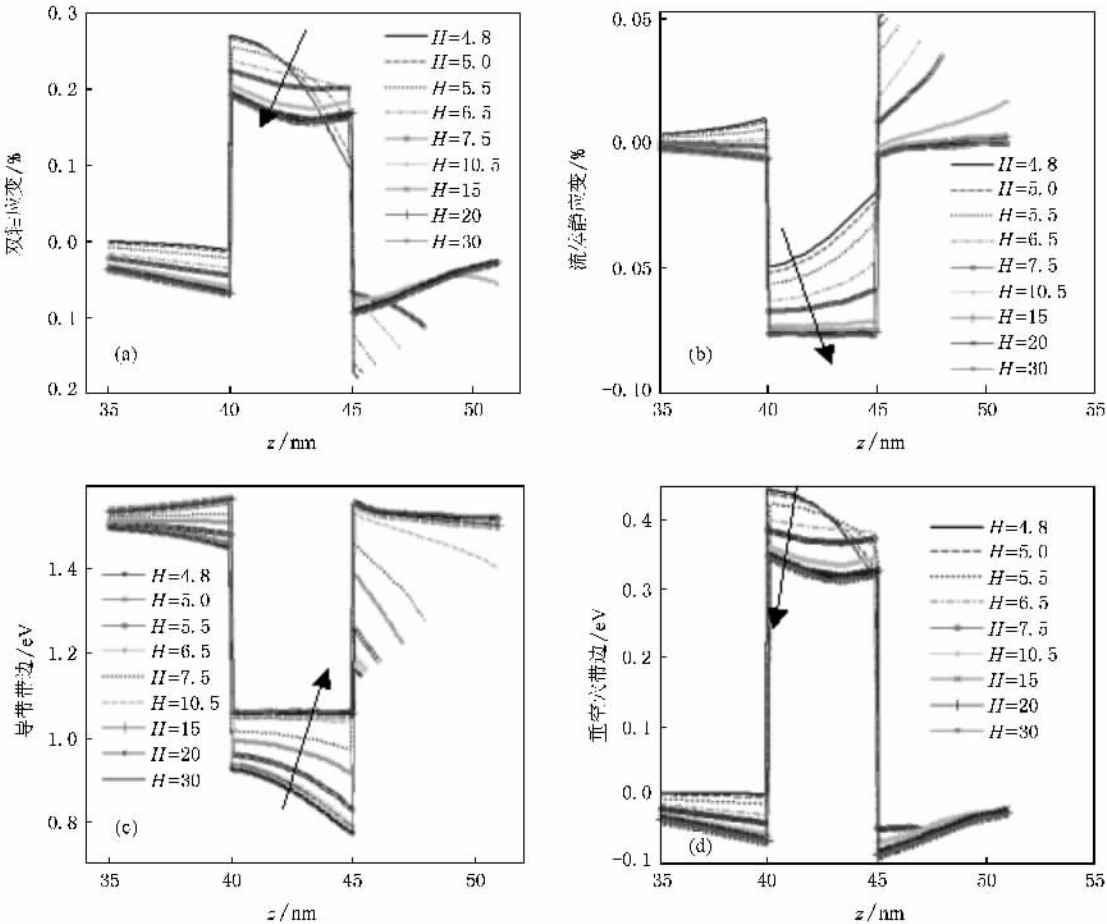


图 4 沿量子点中心轴路径,双轴应变(a),流体静应变(b),导带边(c)和重空穴带边(d)随隔离层厚度的变化

综合以上讨论可以看出, 盖层和隔离层厚度都导致了发光波长蓝移, 其机理是有区别的. 隔离层对应变的影响, 能够导致量子点在热力学和动力学条件下有塌陷的效果, 从而降低量子点高度, 改变量子点形状, 引起发光波长蓝移. 隔离层厚度对带边的影响在导带和价带效果是相同的, 对有效带隙没有明显影响. 盖层生长过程中, 量子点已经被完全覆盖, 对量子点形状不再产生影响, 但应变导致的导带和价带能量的变化方向相反, 导致有效带隙变宽, 同样能引起发光波长蓝移. 另外需要特别强调的是, 本文的讨论, 仅限于量子点间距较大的情况, 随着量子点间距变小, 应变耦合和波函数之间的耦合效应都会显著增强, 这时讨论的结论就不再适用, 一般情况下, 当量子点之间的距离大于量子点底面半径时, 同层量子点之间的耦合效应就可以忽略.

4. 结 论

基于 InAs/GaAs 量子点材料, 系统地讨论了隔离层和盖层在生长过程中, 引起的量子点应变分布和导带边以及价带边的变化. 从晶格失配的角度, 分析了隔离层和盖层厚度对量子点应变分布影响的相同和不同之处, 计算结果与物理解释一致. 分别从应变在生长过程中对量子点形态的影响, 以及应变引起的有效带隙变宽两个因素, 全面解释了量子点加盖前后发光波长蓝移的原因. 本文从应变角度对量子点发光波长蓝移的解释, 有助于理解基于应变工程的量子点发光波长调控的实现, 对拓展 GaAs 基量子点材料的发射波长, 实现 1.3—1.5 μm 光通信发光器件具有启发意义^[21-22].

-
- [1] Chang J F 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 978 (in Chinese) [常加峰 2004 物理学报 **53** 978]
 - [2] Yu Z Y, Wei Y Q 2005 *Journal of Material Science and Technology* **21** 559
 - [3] Xin G F, Chen G Y, Hua J Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1643 (in Chinese) [辛国锋、陈国鹰、花吉珍 2004 物理学报 **53** 1643]
 - [4] Liu Y M, Yu Z Y, Huang Y Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5023 (in Chinese) [刘玉敏、俞重远、黄永箴 2006 物理学报 **55** 5423]
 - [5] Wang Z G 2002 *J. Synthetic Crystals* **31** 208 (in Chinese) [王占国 2002 人工晶体学报 **31** 208]
 - [6] Liu Y M, Yu Z Y, Ren X M, Xu Z H 2008 *Chin. Phys. B* **17** 3471
 - [7] Andreev A D, O'Reilly E P 2000 *Phys. Rev. B* **62** 15851
 - [8] Liu H Y, Sellers I R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 3716
 - [9] Lin C H, Pai W W 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 063102
 - [10] Suzuki R, Miyamoto T, Sengoku T, Koyama F 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 141110
 - [11] Zhou Z Q, Xu Y Q, Bao R H, Ren Z W, Niu Z C 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 094315
 - [12] Lin J H, Yang H B, Qin J, Zhang B, Fan Y L, Yang X J, Jiang Z M 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 083528
 - [13] Liu Y M, Yu Z Y, Huang Y Z 2006 *The International J. Modern Phys. B* **20** 4899
 - [14] Liu Y M, Yu Z Y, Huang Y Z 2007 *J. University Sci. Technol. Beijing* **14** 477
 - [15] Liu G R and Jerry S S Q 2002 *Semiconductor Sci. Technol.* **17** 630
 - [16] Li S S, Xia J B, Yuan Z L 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11575
 - [17] Liu Y M, Yu Z Y, Ren X M 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 1850
 - [18] Song Y X, Yu Z Y, Liu Y M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2399 (in Chinese) [宋禹欣、俞重远、刘玉敏 2008 物理学报 **57** 2399]
 - [19] Persson J, Hakanson U, Johansson M K L, Samuelson L, Pistol M E 2005 *Phys. Rev. B* **72** 085302
 - [20] Lozano J G, Sanchez A M, Garcia R, Gonzalez D 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 151913
 - [21] Jiao R Z, Feng C X, Ma H Q 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1352 (in Chinese) [焦荣珍、冯晨旭、马海强 2008 物理学报 **57** 1352]
 - [22] Jiao R Z, Feng C X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 685 (in Chinese) [焦荣珍、冯晨旭 2008 物理学报 **57** 685]

Effects of the thickness of spacing layer and capping layer on the strain distribution and wavelength emission of InAs/GaAs quantum dot^{*}

Liu Yu-Min¹✉† Yu Zhong-Yuan¹✉ Ren Xiao-Min²

¹✉ School of Science, Beijing University of Posts & Telecommunications, Beijing 100876, China

²✉ Key Laboratory of Optical Communication and Lightwave Technologies Ministry of Education, Beijing 100876, China

(Received 31 May 2008 ; revised manuscript received 1 July 2008)

Abstract

A systematic investigation is given about the influence of thickness of the spacing layer on the strain distribution during the capping stage of the quantum dot. The calculated results show that the mismatch between the lattice constant of the spacing layer along the growth direction and that of the quantum dot is very important for the strain distribution. The height of the quantum dot is compressed during the capping stage, which is qualitatively interpreted from the strain distributions. When the thickness of the spacing layer equals the quantum dot, the influence of thickness of the capping layer on strain distribution is also discussed. Based on the deformation potential theory, the dependence of the emission wavelength on the thickness of the capping layer is investigated. The calculated results agree well with the experiment results. We conclude that, during the capping stage of the quantum dot, the strain is very critical for both the shape of the quantum dot and the optical characteristics; extension of the emission wavelength via quantum dot strain engineering is an effective means.

Keywords : strain engineering, semiconductor quantum dot, spacing layer, capping layer

PACC : 0365, 2110D

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (No. 2003CB314901), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60644004) and the High School Innovation and Introducing Talent Project (Grant No. B07005).

† E-mail : liuyuminhqy@263.net