

InAs/GaAs 量子点的静压光谱压力系数研究^{*}

汤乃云 陈效双[†] 陆 卫

(中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

(2004 年 9 月 10 日收到, 2004 年 10 月 15 日收到修改稿)

采用有效质量模型和非线性弹性理论计算了不同尺寸 InAs/GaAs 量子点的静压光谱发光峰的压力系数(PC). 量子点峰位随压力的变化主要来自禁带宽度和电子束缚能随压力变化两方面的贡献. 由于 InAs/GaAs 量子点是一个应变体系, 体系的晶格常数, 失配应变和弹性系数均随外加压力变化, 使得加压后量子点的禁带宽度相对于非应变体系略有减小, 同时势垒高度增加, 电子束缚程度增加. 两者共同作用引起的 InAs 应变层的禁带宽度压力系数减小是导致量子点的压力系数小于 InAs 体材料的主要原因. 同时计算结果表明, 电子束缚能随压力变化对不同尺寸量子点的压力系数的影响不同, 量子点尺寸越小, 受其影响越大, 压力系数也越大.

关键词: 量子点, 压力系数, 应变

PACC: 7320D, 7855E

1. 引 言

InAs/GaAs 应变量子点材料由于三维的量子约束, 产生了许多独特的光学性质和电学性质, 在光电子、微电子领域有着广泛的应用前景, 以及对研究零维系统的性质方面有着重要意义, 目前国际上已对它进行了很多实验和理论研究^[1,2]. 低温静压光谱, 作为研究材料电子结构、光学跃迁等性质的一种很重要的实验手段^[3], 目前已被应用于研究 InAs/GaAs 量子点中束缚的电子和空穴态^[3-5]. Paul 曾经指出 III-V 族半导体的能带带边压力系数均在 100 meV/GPa 量级^[6], 而目前报道的 InAs/GaAs 量子点的压力系数一般为 75—90 meV/GPa, 小于 GaAs 和 InAs 体材料的压力系数^[3-5], 同时不同尺寸的量子点具有不同的压力系数, 这是令人费解的.

量子点静压光谱随压力的变化主要来自禁带宽度和电子束缚能随压力变化两个方面的贡献. 而目前的报道大部分仅关注于无应变 InAs, GaAs 体材料的禁带宽度随压力的变化, 尚未见对量子点应变层的禁带宽度和电子束缚能随压力变化的详细理论研究. 由于 InAs/GaAs 量子点系统是一个应变体系, 晶

格常数, 失配应变和弹性常数均随外加压力变化, 线性弹性理论不再适用于计算量子点发光峰的压力系数. 本文采用有效质量模型和非线性弹性理论计算了 InAs/GaAs 量子点静压光谱发光峰的压力系数. 计算结果表明, 应变层中禁带宽度减小和电子束缚能增加是量子点压力系数随尺寸变化, 并且小于 InAs 体材料压力系数的主要原因. 由于 InAs 体材料的压力系数小于 GaAs 体材料, InAs/GaAs 量子点的势垒高度随压力增加而迅速增加. 按照通常的量子阱模型, 量子点的压力系数应介于 InAs 和 GaAs 体材料的压力系数之间. 但是, 考虑到失配应变和体系弹性常数随压力的变化, 加压后量子点应变层导带带边势能相对于无应变体系略有降低, 禁带宽度减小, 导致电子束缚能增加, 从而压力系数减小. 尺寸较大的量子点电子束缚程度较弱, 电子束缚能受势垒高度变化的影响较小, 其压力系数仅受禁带宽度随压力变化的影响; 尺寸较小的量子点束缚程度较强, 势垒高度的变化对电子束缚能影响较大, 其压力系数受到禁带宽度和电子束缚能变化两方面的影响, 因此量子点的尺寸越大, 其发光峰的压力系数越小, 甚至可以远小于 InAs 体材料的压力系数.

^{*} 国家自然科学基金创新群体、国家自然科学基金重点基金(批准号:10234040);上海市科学技术委员会重点项目(批准号:02DJ14066);上海市信息化专项资金项目(批准号:2003010)和国家重点基础研究资助项目(批准号:2001CB6104)资助的课题.

[†]E-mail: xschen@mail.sitp.ac.cn

2. 理论模型

2.1. 非线性弹性理论

根据非线性弹性理论, Frogley 等^[7]指出, 当施加压力时, 衬底和外延层的晶格常数发生变化:

$$a_{1s}(P) = a_{1s} \left(1 + \frac{B'P}{B_0} \right)^{-1/3B'}$$

导致外延层与衬底之间的应变随压力变化关系为

$$e_0(P) = 1 - \left(1 + \frac{B'_s P}{B_s} \right)^{-1/3B'_s} \left(1 + \frac{B'_1 P}{B_1} \right)^{1/3B'_1} \frac{a_s}{a_1}$$

将其保留到压力的一阶关系则变为

$$e_0(P) \approx \frac{a_1 - a_s}{a_1} + \frac{1}{3} \frac{a_s}{a_1} \left(\frac{1}{B_s} - \frac{1}{B_1} \right) P.$$

式中下角 $1, s$ 分别代表外延层和衬底; a 为晶格常数; B 为材料的弹性模量; B' 为弹性模量随压力变化的系数.

同时流体静压力导致样品的弹性常数变化, 设 C'_{ij} 为各弹性常数 C_{ij} 随压力变化的线性项系数, 则 $C_{ij}(P) = C_{ij} + C'_{ij}P$.

忽略激子束缚能随压力的变化, 量子点基态 PL 峰的压力系数(PC)来自三方面的贡献: 禁带宽度, 电子基态, 空穴基态, 具体表示为

$$\frac{dE_{\text{PL}}}{dP} = \frac{dE_{E_g}}{dP} + \frac{dE_{e_1}}{dP} + \frac{dE_{\text{hh}_1}}{dP},$$

即 $PC = PC_{E_g} + PC_{e_1} + PC_{\text{hh}_1}$.

2.2. 应力分布

量子点中的应力分布的计算采用 Green's Function 方法^[8], 同时考虑了立方晶体的弹性常数的各向异性. 应力张量的傅里叶变换为

$$e_{ij} = e_0 x_{\text{QD}} \times \left\{ \delta_{ij} - \frac{(C_{11} + 2C_{12})\zeta_i \zeta_j}{1 + (C_{12} + C_{44}) \sum_{p=1}^3 \frac{\zeta_p^2}{C_{44}\zeta + C_{an}\zeta^2}} \right. \\ \left. \times \frac{1}{2} \left[\frac{\zeta^2}{C_{44}\zeta^2 + C_{an}\zeta_j^2} + \frac{\zeta^2}{C_{44}\zeta^2 + C_{an}\zeta_j^2} \right] \right\},$$

X_{QD} 是量子点特征函数(量子点内为 1, 量子点外为 0)的傅里叶变换. 并且 $C_{an} = C_{11} - C_{12} - 2C_{44}$, $e_{00} = \frac{a_1 - a_s}{a_s}$ ($i = 1, 3; j = 1, 3$).

2.3. 能带分布

在本文中我们仅关心导带带边和重空穴带带

边的势能分布. 应用 K·P 理论可得量子点导带边势能可表示为^[9]

$$V_e = E_{v_{\text{av}}} + \frac{\Delta_0}{3} + E_{g_0} + a_c e_{\text{hh}},$$

E_{g_0} 是材料带隙. 重空穴带可表示为

$$V_{\text{hh}} = E_{v_{\text{av}}} + \frac{\Delta_0}{3} + a_v e_{\text{hh}} - b e_t,$$

a_c, a_v, b 是材料的形变势, 其中 Δ_0 是自旋-轨道分裂能. e_{hh}, e_t 分别为体系的流体静压应变和单轴应变,

$$e_{\text{hh}} = e_{11} + e_{22} + e_{33},$$

$$e_t = e_{33} - \frac{1}{2} e_{11} - \frac{1}{2} e_{22}.$$

2.4. 有效质量模型

假设量子点的形状为沿生长方向对称的半球形. 根据有效质量模型^[10], 薛定谔方程可写为

$$\left[-\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{e,\text{hh}}(r, z) \right] \\ \times \varphi(r, \theta, z) = E \varphi(r, \theta, z).$$

波函数可表示为

$$\left[-\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_e(r, z) \right] g_i(z) = E_0(r) g_i(z),$$

$$\left[-\frac{1}{r^2} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \frac{\partial}{\partial r} - m^2 \right) + E_0(r) \right] f_m(r) = E f_m(r).$$

详细的能级计算可见文献 [10].

3. 结果分析

近年来人们已对 InAs/GaAs 量子点的静压光谱开展了一些实验研究工作, 所研究的量子点的尺寸一般为 1—7 nm, 横向尺寸为 10—80 nm, 压力系数一般仅为 70—90 meV/GPa, 仅 Li 和 Ma 等报道的量子点的压力系数为 102 meV/GPa 和 106 meV/GPa^[11, 12]. 图 1 将量子点 PL 谱压力系数计算值与前人的所测结果作比较. 这些较小的压力系数比 GaAs 体材料的压力系数小 20%—30%, 同时大多数也比一般公认的 InAs 体材料的压力系数小. 按照通常的量子阱模型, 量子点的压力系数应介于垒材料 GaAs 和阱材料 InAs 的压力系数之间^[13]. 同时, 由图中可以看到 InAs/GaAs 量子点的压力系数与量子点发光峰能量有一定的关系. 量子点的发光峰能量随其尺寸、特别是高度的增加而减小. 由此可知, 量子点的尺寸越大, 即发光峰能量越小, 其发光峰的压力系数越小.

下面将采用 Frogley 的非线性弹性理论^[7]解释量子点较小的压力系数及其随尺寸变化问题.

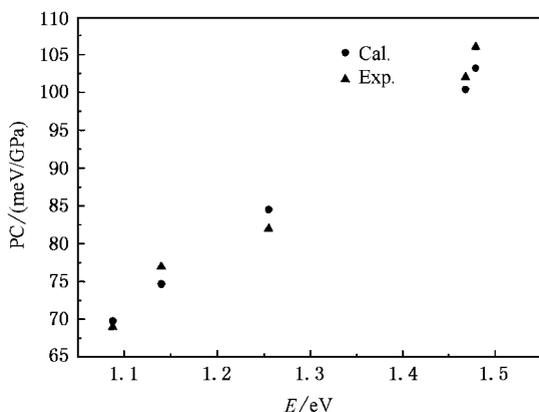


图1 InAs/GaAs 量子点发光峰的压力系数与发光峰能量的关系 (实心三角为实验结果为 Manjon 等人的测量结果^[5,12-15], 实心圆为计算结果)

对半径 $R = 6 \text{ nm}$, 高度 $h = 3 \text{ nm}$ ($Q = R/h$), 生长方向沿 z 轴的量子点, 图 2 中示出了量子点的流体静压应变和单轴应变沿生长方向分布. 由图中可看出, 当外加流体静压 $P = 1 \text{ GPa}$ 时, 量子点内的流体静压应变变化量 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$, 单轴应变几乎没有发生变化. 应变量的变化导致了量子点的导带和价带带边势能改变. 首先, 不考虑非线性弹性理论, 忽略量子点流体静压应变的变化, 即令 $\Delta e_{\text{hh}} = 0\%$, 如图 3 所示, 加压后, InAs 应变层禁带宽度增加量 ΔE_g 约 99 meV , 同时, 由于 GaAs 体材料的压力系数 (110.6 meV/GPa) 大于 InAs 体材料的压力系数 (98.2

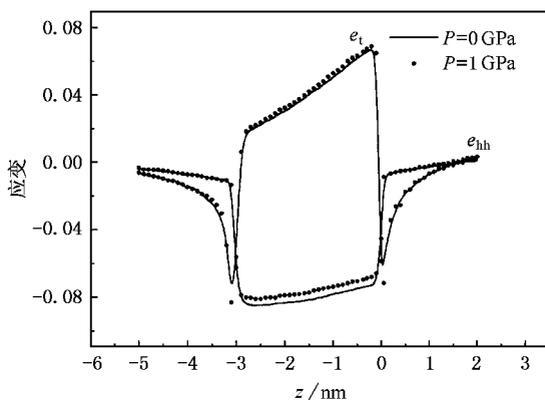


图2 低温 15 K 时, 常压及 1 GPa 压力下量子点的流体静压应变及单轴应变沿量子点生长方向的分布

meV/GPa), 量子点势阱高度增加约 12 meV . 由于量子点是一个应变体系, 根据 Frogley^[7]等人的非线性

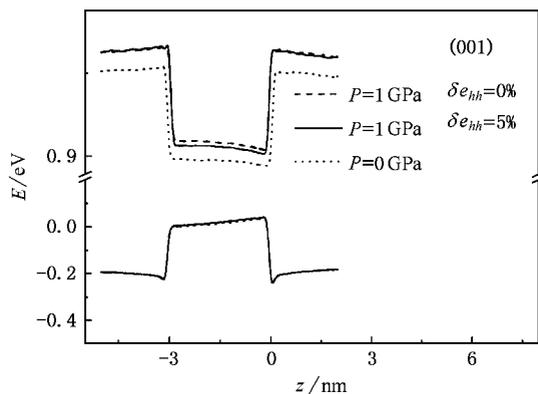


图3 量子点导带及价带势能沿量子点生长方向的分布

弹性理论, 应变体系内晶格常数和弹性常数随压力产生变化, InAs 层中的内在应变随压力的变化对势能分布产生较大影响, 从而使量子阱的带边偏离压力下的体材料情况. 当 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$ 时, 量子点的导带带边势能比 $\Delta e_{\text{hh}} = 0\%$ 时减小了 34 meV , 而价带带边基本上没有发生变化, 所以禁带宽度相对减小了 34 meV , 即 ΔE_g 从 99 meV 减小至 65 meV ; 同时势垒高度增加 34 meV , 电子束缚能相应增加. 量子点的势能分布、禁带宽度和载流子束缚能发生变化, 必然导致静压光谱发光峰压力系数发生变化. 图 4 分别在 $\Delta e_{\text{hh}} = 0$ 和 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$ 两种情况下计算了不同高度的量子点的压力系数. 由于空穴有效质量较大, 其基态能级随压力变化较小, 即 $PC_{\text{hh1}} \approx 0$, PL 谱峰的压力系数的变化主要来自于 PC_{E_g} 和 PC_{el} 两方面的贡献. 如图 4(a) 所示, 令 $\Delta e_{\text{hh}} = 0\%$ 时, 量子点的压力系数介于 GaAs 体材料和 InAs 体材料的压力系数之间, 符合一般的量子阱模型. 考虑量子点的晶格常数和弹性常数在实际情况下随压力变化, 若采用非线性弹性理论, 即 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$, 由图 4(b) 所示, 量子点的压力系数明显减小. 当 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$ 时, 量子点的导带带边势能比 $\Delta e_{\text{hh}} = 0\%$ 时减小了 34 meV , ΔE_g 从 99 meV 减小至 65 meV , 由于压力为 1 GPa , 直接可知 PC_{E_g} 从 98.22 meV/GPa 减小为 64.8 meV/GPa , 从而量子点的发光峰压力系数 PC 也相应减小. 虽然量子点的势垒高度增加, 电子束缚能增加, 导致 PC_{el} 增加, 但是由图可知, 其作用小于禁带宽度的变化对压力系数的影响. 因此 $\Delta e_{\text{hh}} = 5\%$ 时, 量子点的压力系数小于 $\Delta e_{\text{hh}} = 0\%$ 时, 甚至可能小于 InAs 体材料的压力系数.

对于高度较小的量子点, 势阱越窄, 电子的束缚

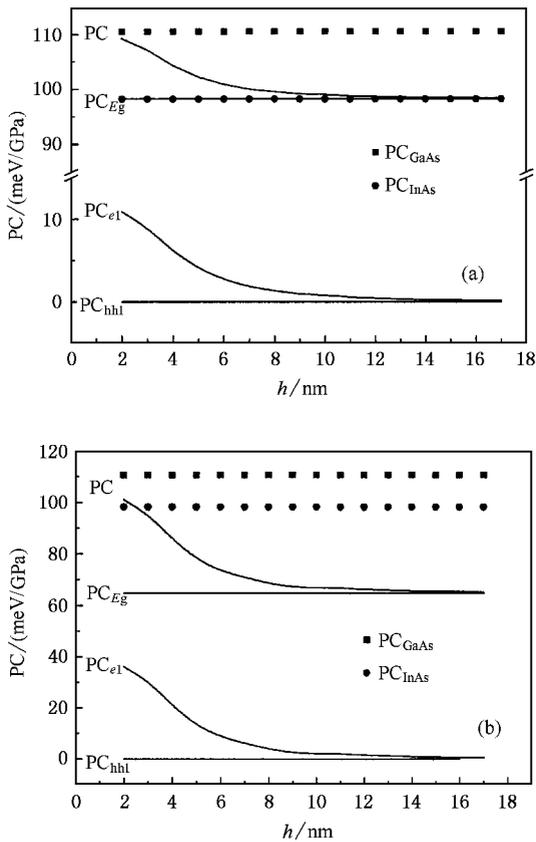


图 4 (a) $Q=2, \Delta e_{hh} = 0\%$ 时, 量子点的压力系数随尺寸的变化, (b) $Q=2, \Delta e_{hh} = 5\%$ 时, 量子点的压力系数随尺寸的变化关系 ($PC_{InAs}, PC_{GaAs}, PC_{E_g}, PC_{el}, PC_{hh}$ 分别代表 InAs 体材料、GaAs 体材料、量子点禁带宽度、电子基态能级、空穴基态能级的压力系数. 实心方框均为 PC_{GaAs} , 实心圆均为 PC_{InAs})

能越大, 势阱高度的变化对电子束缚能的影响越大, 同时 PC_{el} 越大, 量子点高度越大, 电子的束缚能就越小, 受势垒高度变化的影响就越小, 由图中可以看到, 当量子点的尺寸变大时, PC_{el} 慢慢接近于零, 量子点发光峰的压力系数 PC 接近于 PC_{E_g} ; 另一方面, 当量子点的尺寸小于一定的尺寸时, 其压力系数有可能大于 InAs 体材料的压力系数. Li 和 Ma^[11-13] 等分别报道了量子点的压力系数为 102 meV/GPa 和 106 meV/GPa, 均大于 InAs 体材料的压力系数.

图 5 分别计算了考虑弹性常数和晶格常数发生变化时不同尺寸的量子点压力系数. 由图中可以看出, 当仅考虑晶格常数发生变化时, 相似于图 4(a), 量子点禁带宽度的压力系数为 96.6 meV/GPa, 相对 InAs 体材料的压力系数仅减小 1.6 meV/GPa, 因此导致较大的量子点压力系数. 而仅考虑弹性常数在压

力下发生变化时, 量子点的压力系数与图 4(b) 相似, 由于导带势能的变化, PC_{E_g} 较小, 仅为 66 meV/GPa, 因此量子点具有较小的压力系数. 由图可知, 弹性常数随压力的变化是量子点具有较小的压力系数的重要原因.

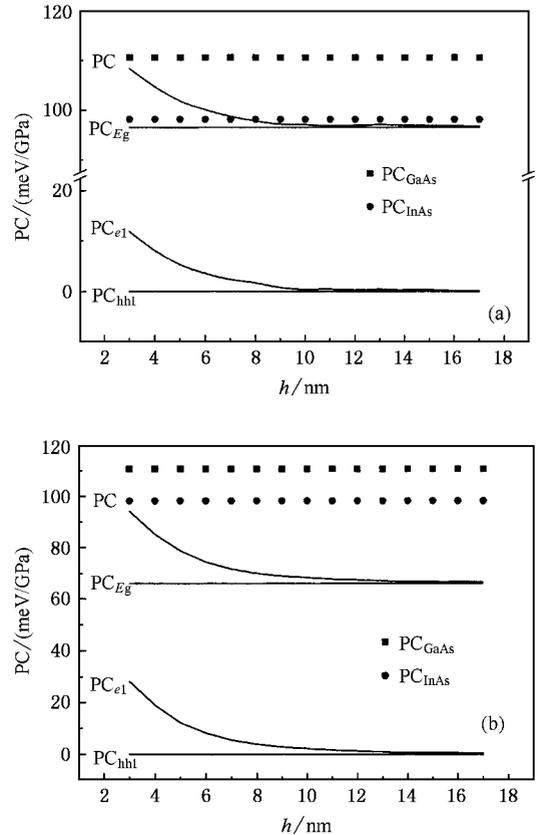


图 5 (a) $Q=2$, 仅考虑晶格常数的变化, 量子点压力系数随尺寸的变化关系 (b) $Q=2$, 仅考虑弹性常数的变化, 量子点压力系数随尺寸的变化关系 (实心方框均为 PC_{GaAs} , 实心圆均为 PC_{InAs})

4. 结 论

InAs/GaAs 量子点是一个大应变体系, 其弹性常数和晶格常数在外加压力下发生改变, 导致了量子点禁带宽度压力系数减小, 电子束缚能增加. 两者共同作用使得量子点具有较小的压力系数. 同时, 电子束缚能变化对不同尺寸的量子点发光峰压力系数影响不同. 尺寸越小的量子点, 势阱越窄, 受势垒高度和电子束缚程度影响越大, 其发光峰的压力系数也就越大.

- [1] Jang W H *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1541(in Chinese)[姜卫红等 1999 物理学报 **48** 1541]
- [2] Wang X D *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2230(in Chinese)[王晓东等 2000 物理学报 **49** 2230]
- [3] Lyapin S G *et al* 1999 *Phys. Stat. Sol. B* **211** 79
- [4] Itskevich I E *et al* 1997 *Appl. Phys. Lett* **70** 505
- [5] Itskevich I E *et al* 1990 *Phys. Rev. B* **60** R2185
- [6] Paul W and Warschauer D M 1963 *Solids at High Pressure* **8** 226
- [7] Frogley M D *et al* 2000 *Phys. Rev B* **62** 13612
- [8] Andreev A D *et al* 1999 *J Appl. Phys.* **86** 297
- [9] Califano M and Harrison P 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 389
- [10] Arkadiusz W , Pawel H and Simon F 1996 *Phys. Rev. B* **54** 5604
- [11] Ma B S *et al* 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 933
- [12] Li G H *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 18420
- [13] Li G H *et al* 1998 *J. Phys. :Condens. Matter* **10** 11111
- [14] Goñi A R *et al* 1987 *Phys. Rev. B* **36** 1581
- [15] Li G H *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 1575

Hydrostatic pressure coefficients of the photoluminescence of InAs/GaAs quantum dots^{*}

Tang Nai-Yun Chen Xiao-Shuang[†] Lu Wei

(*National Laboratory for Infrared Physics , Shanghai Institute of Technical Physics , Chinese Academic of Science , Shanghai 200083 , China*)

(Received 10 September 2004 ; revised manuscript received 15 October 2004)

Abstract

There is a significant diminution in the hydrostatic pressure coefficients (PCs) of the photoluminescence (PL) for InAs/GaAs quantum dots (QDs) in comparison with that of bulk binary. We study this phenomenon with the nonlinear elasticity theory. The variation of the lattice and elastic constants plays an important role in the change of PCs , which causes the obvious decrease of the built-in strains in InAs/GaAs QD. Therefore , the energy gap and the electronic confined energy change with pressure subsequently. It is the main reason for the measured small PCs of PL from QDs. Also the calculation reveals that the PCs are sensitive to the sizes of QD. The smaller the quantum dot is , the more greatly the change of the electronic confined energy affects the PCs. This effect gives rise to the increase of PCs when dot size is reduced.

Keywords : quantum dot , the pressure coefficients , strain

PACC : 7320D , 7855E

^{*} Project supported by Fund of Chinese National Science Creative Groups , the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10234040) , Key Fund of Shanghai Science and Technology Function (Grant No. 02DJ14606) , Shanghai Specialized Information Fundation (Grant No. 2003010) , and the National Key Basic Research Special Foundation of China (Grant No. 2001CB6104).

[†] E-mail : xschen@mail. sitp. ac. cn