

应变自组织量子点的几何形态对应变场分布的影响^{*}

刘玉敏^{1,2,†} 俞重远^{1,2} 杨红波^{1,2} 黄永箴³

(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 100876)

(3 中国科学院半导体研究所 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 采用自组织生长应变量子点的二维轴对称模型, 系统分析了量子点内部及周围材料的应变分布. 分别对透镜形、圆柱形、圆锥形和金字塔形量子点的应变分布进行了比较. 结果表明主应变和切应变的分布受几何形状影响比较明显, 静水应变几乎不受几何形状改变的影响, 无论是在中心轴路径还是量子点周边路径静水应变基本一致, 中心轴路径无切向应变分量, 切向应变分量主要集中在量子点的边界, 但在量子点几何边界的中心无切向应变, 切向应变的极值分布在几何边界的拐点处.

关键词: 应变; 量子点; 自组织; 低维材料

PACC: 0365; 2110D; 7280E

中图分类号: O469

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)12-2355-08

1 引言

以半导体量子点为代表的新型纳米材料以其独特的量子尺寸效应、量子隧穿、库仑阻塞以及非线性光学效应使其成为新一代光电子材料与器件的基础^[1]. 以半导体量子点为基础的量子点激光器、量子点太阳能电池和量子计算已经成为当前研究的热点领域. 刻蚀生长量子点带来的杂质和表面污染使量子点的性能与理论预期相差甚远, 因此以应变外延为代表的 Stranski-Krastanov (S-K) 生长模式已经成为生长半导体量子点材料的标准. 在 S-K 生长模式下, 初始阶段, 材料在衬底表面生成约 1~3 个原子厚度的浸润层, 此后由于材料高应变适配的积累导致应变释放, 从而生长出具有三维岛状材料的量子点. 根据生长条件(晶格失配、温度、生长速率和生长方向)的不同, 在实验室条件下已经生长出各种形状的量子点材料, 如金字塔形状^[2]、圆柱形状^[3]、透镜形状^[4]和球形^[5]等. 已经知道应变材料的应变累积和释放过程是量子点生长的内在驱动^[5]. 生长过程

中不同区域可能存在应变不完全释放和应变过释放等情况, 这对量子点材料的后续生长和材料的光电特性有重要影响. 已经有很多理论工作者用多种方法对量子点的应力分布进行了讨论, 如分子运动学理论^[6]、解析连续性方法^[7]、有限差分法和有限元法^[8]等. 分子运动学方法要利用两个或多个原子相互作用势函数, 因此势函数的选取非常重要, 对于不同的材料势函数模型及参数选择不同, 对于 Si/Ge, InAs/GaAs 量子点系统通常采用 S-W 势或 Keating 势, 当量子点系统的原子数目较多时, 分子动力学方法的效率急剧下降, 因此分子动力学方法适合描述孤立的小体积量子点系统. 解析连续性方法利用类似静电场分析中的格林函数法, 假定量子点埋藏于无限大或半无限大的衬底材料中, 这样量子点和周围材料的应力应变分布可以转化为格林函数对量子点的表面积分, 然而这一前提条件通常影响计算得到的应力应变的真实程度. 有限元法则具有功能强大, 计算速度快, 与仿真系统的大小无关, 不需太多假设条件等优点. 本文主要利用有限元法研究透镜形、圆柱形、金字塔形和圆锥形量子点的应变分

^{*} 国家重点基础研究发展计划(批准号:2003CB314901), 国家高技术研究发展计划(批准号:2003AA311070)和集成光电子学国家重点联合实验室开放课题资助项目

[†] 通信作者: 刘玉敏 男, 1976 年出生, 讲师, 主要研究方向为非线性光纤光学、半导体光电子学、光子晶体波导等. Email: liuyuminhqy@263.net
2005-04-14 收到, 2005-08-31 定稿

布受几何形状的影响情况.

2 量子点形状与应变关系分析

为了研究方便,我们只研究二维轴对称模型.由于浸润层在研究量子点材料的应力应变分布时的影响可以忽略^[9],因此在建模时,将浸润层略去.图1给出了变形前四种形状量子点的二维模型,图中点划线为圆柱形,点线为圆锥形,实线为金字塔形,星线表示透镜形状.只需用两个参数就可以确定其形状,一个为量子点的高度,另一个为基底的长度.在本文中所有量子点的高度 h 均为 5 nm,基底长度 l 为透镜形量子点的基底长度.我们假定透镜量子点

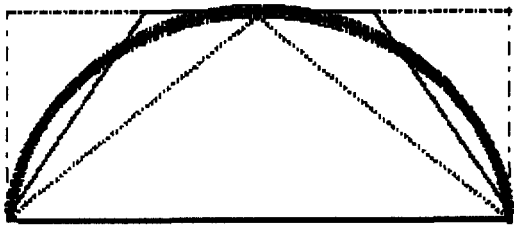


图 1 四种量子点几何形状示意图

Fig. 1 Geometry Sketch of the four kinds of shaped quantum dots

的曲率半径 $R = 8$ nm,根据量子点高度和曲率半径与基底长度的简单几何关系很容易求得对应的基底长度 $l = 14.8$ nm.有限元网格划分采用非均匀网格划分,但最大划分网格不超过 0.5 nm.为了使模型更具有普适性,在材料选择上我们不针对特定的材料,并作如下假定:(1)假定衬底和量子点材料的晶格失配表示为 $\frac{a_d - a_s}{a_s} = 0.04$,其中 a_d 和 a_s 分别表示量子点和衬底的晶格常数,盖层与衬底材料相同.(2)假定衬底和量子点材料的弹性常数相同,各向同性材料弹性常数 $C_{11} = 150$ GPa, $C_{12} = C_{44} = 50$ GPa.

量子点生长在 (001) 表面方向上,水平方向 (100) 为 x 方向,纵向方向 (001) 为 z 方向,整个二维平面位于 $y = 0$ 的平面上.约束条件考虑到实际情况和周期性,我们采用如下限制:系统左右两侧采用对称边界条件或在 x 方向采用固定位移边界条件,衬底底边固定.载荷是由于衬底和量子点材料的晶格失配引起的,利用量子点材料各个方向经历均匀伪热膨胀来表示,令材料的热膨胀系数为晶格失配

的绝对值,并且量子点经历 1 K 的温度变化^[8].

3 结果与讨论

由于采用了轴对称模型,只能给出在 $y = 0$ 平面的计算结果.我们计算了四种形状量子点的 ϵ_{xx} 应变分量的等值色图分布,如图 2 所示,以及 ϵ_{zz} 应变分量的等值色图,如图 3 所示.从图 2 可以看出,由于几何形状的不同,在锥形和透镜形量子点中 ϵ_{xx} 应变分量的极大值出现在紧邻量子点顶点的盖层材料位置,金字塔形量子点 ϵ_{xx} 极大值出现在量子点左右顶角附近的盖层材料部分,而圆柱形量子点 ϵ_{xx} 极大值出现在量子点顶部中心附近的衬底材料部分.金字塔形、透镜形和锥形量子点 ϵ_{xx} 极小值出现在量子点材料的左右下角,圆柱形量子点的 ϵ_{xx} 极小值位于量子点顶部中心位置的量子点材料部分.比较图 3 中 ϵ_{zz} 分量的极值分布可以看出:对于锥形、透镜形和金字塔形,极大值出现在量子点的左右下顶角附近的盖层材料部分,极小值出现在量子点材料的顶点.对于金字塔形量子点, ϵ_{zz} 分量的极大值出现在量子点左右下顶角的衬底材料部分,极小值出现在量子点材料的左右上顶角.圆柱形量子点 ϵ_{zz} 极大值位于量子点左右两侧中心部分的盖层材料,极小值位于量子点左右两侧中心的量子点材料中.极值位置分布的不同,定性说明了几何形状对应变场分布的影响.

为了定量说明不同几何形貌量子点对应变场分布的影响,我们定义一条沿量子点中心轴的路径,路径起点在盖层材料内部,距离量子点顶点的垂直距离为 5 nm,终点在衬底材料内部,距离量子点底部的垂直距离为 15 nm,量子点高度为 5 nm,路径总的长度为 25 nm,我们称该路径为中心轴路径.图 4 给出了四种几何形貌量子点的 ϵ_{xx} , ϵ_{zz} 和静水应变 ϵ_{hh} 分量沿中心轴路径的分布情况.圆柱形量子点内部的应变分布相对均匀,没有大的起伏,透镜形和锥形量子点在量子点内的应变分布变化基本一致,但锥形量子点在量子点内部出现了应变过释放,金字塔量子点的应变在靠近顶点的地方有向相反方向变化的趋势.在靠近量子点底部的衬底材料部分,应变分量在基底长度相同的条件下受量子点的几何形貌影响较小,可以忽略.在量子点顶部的盖层材料中,由于顶部的几何形状过渡有明显区别,应变分量差别较大.圆柱形量子点顶部的横向尺寸与基底一致,

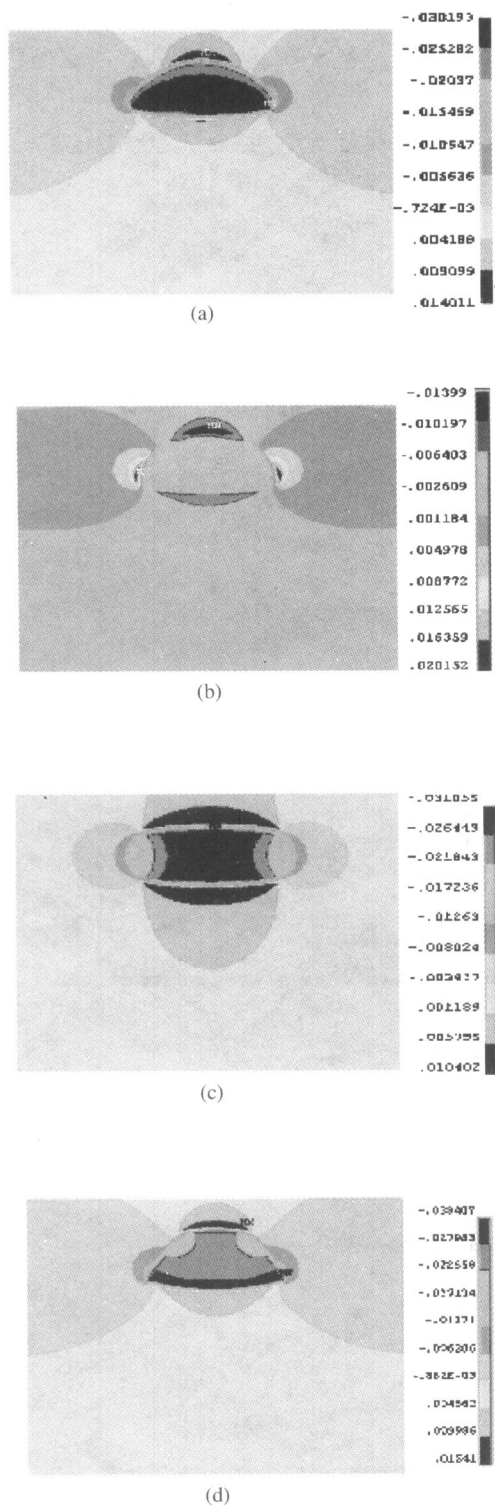


图 2 四种不同形状量子点的 xx 应变分量等值分布色图
 (a) 透镜形; (b) 锥形; (c) 圆柱形; (d) 金字塔形

Fig.2 Contour plots of the xx strain component for the four kinds of shaped quantum dots (a) Lens shaped; (b) Conical shaped; (c) Cylindrical shaped; (d) Pyramid shaped

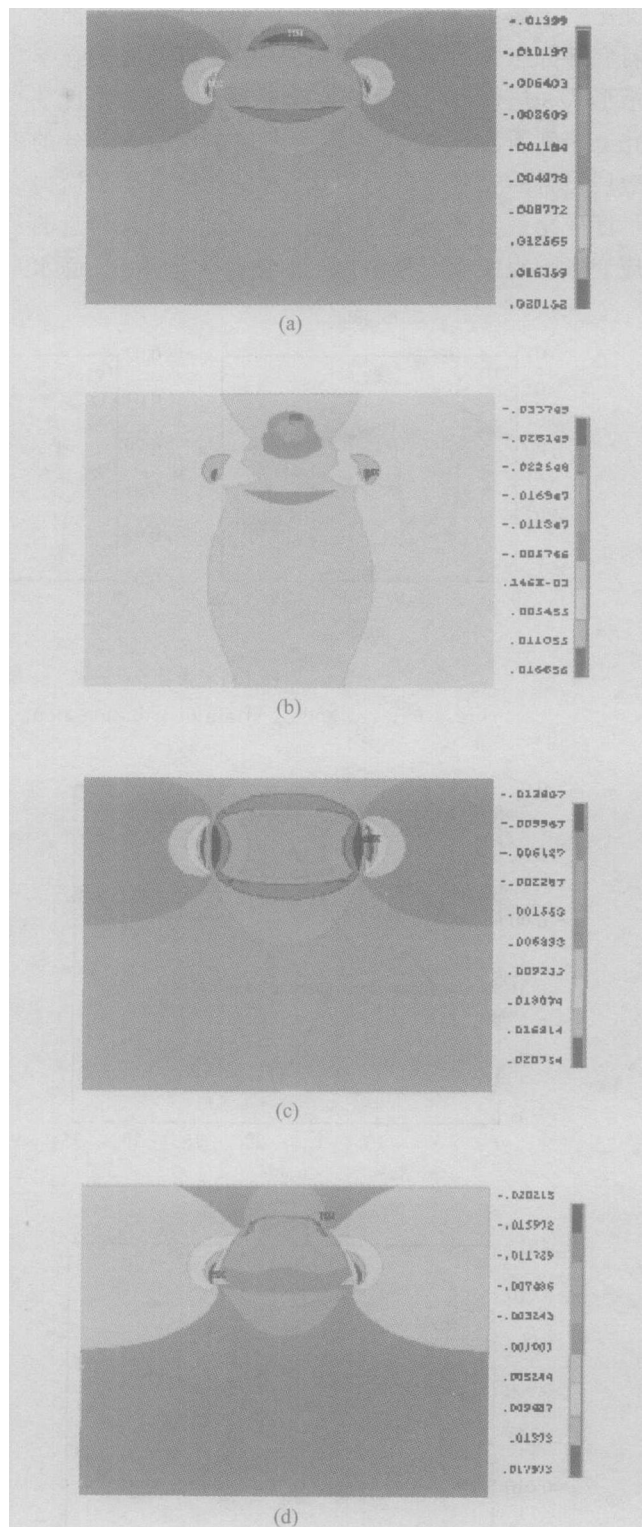


图 3 四种不同形状量子点的 zz 应变分量等值分布色图 (a) 透镜形; (b) 锥形; (c) 圆柱形; (d) 金字塔形

Fig.3 Contour plots of the zz strain component for the four kinds of shaped quantum dots (a) Lens shaped; (b) Conical shaped; (c) Cylindrical shaped; (d) Pyramid shaped

因此影响也最小,盖层应变分布基本与量子点底部的衬底部分应变分量大小相同.从图 1 可以看出金字塔形状和透镜形状量子点在接近顶点的横向尺度变化上差别不大,这一点使得接近量子点顶点部分的盖层材料的应变分量也相对一致.锥形量子点横向尺度变化最剧烈,变化幅度最大,因此对盖层附近的应变影响程度也大得多,如图 4(a),(b)所示.静

水应变在中心轴路径的分布类似于一个有限深势阱,盖层和衬底材料基本无静水应变,势阱部分静水应变相同,不受量子点几何形状的影响.但势阱宽度因几何形貌不同而略有差别,金字塔形宽度最宽,其次是圆柱形,透镜和锥形量子点势阱宽度一致,宽度也最窄.

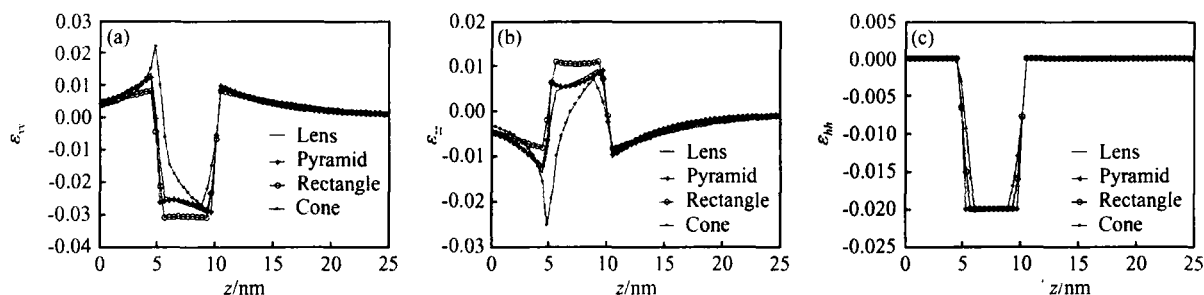


图 4 四种几何形貌量子点的 ϵ_{xx} , ϵ_{zz} 和静水应变 ϵ_{hh} 沿中心轴路径的分布示意图

Fig. 4 ϵ_{xx} , ϵ_{zz} and ϵ_{hh} strain distribution along the center axis path of each kind of quantum dots

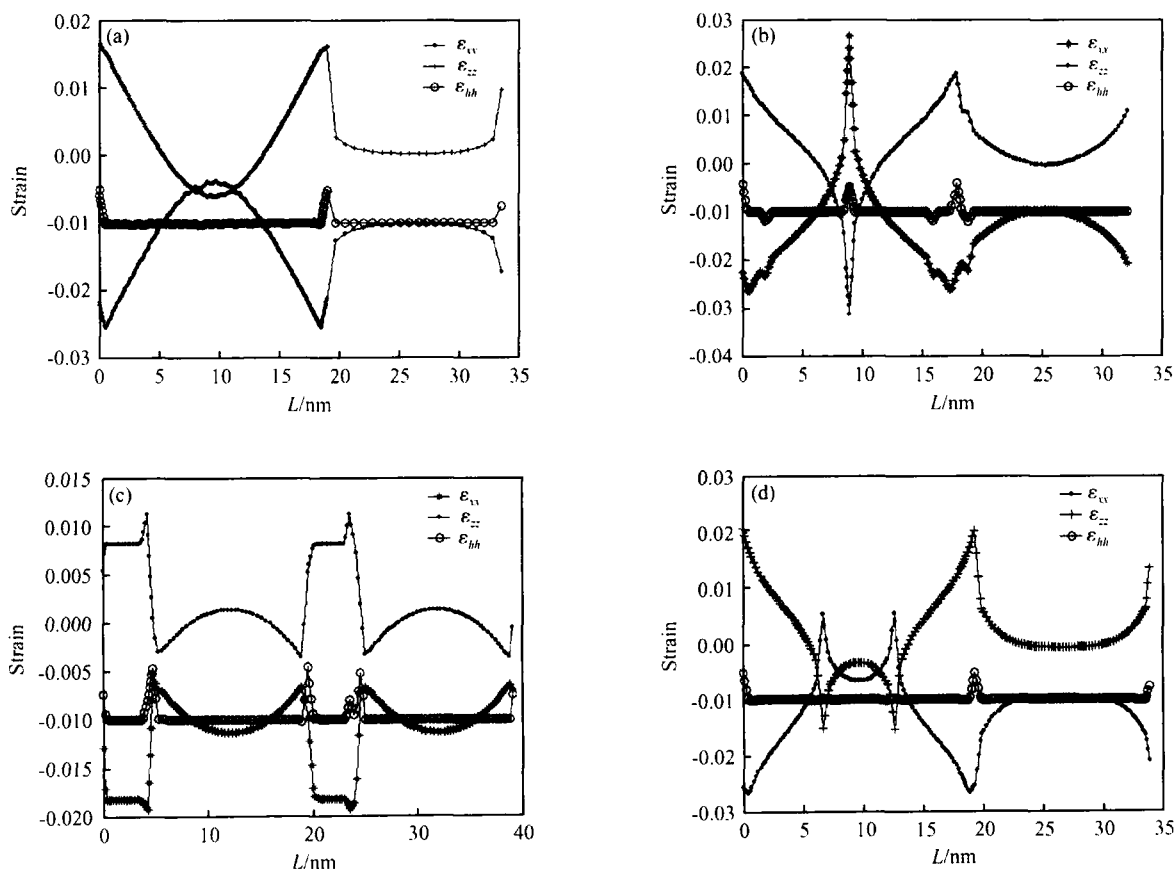


图 5 四种几何形貌量子点沿量子点与势垒材料界面上的应变场分布 (a) 透镜形;(b) 锥形;(c) 圆柱形;(d) 金字塔形

Fig. 5 Strain distribution along the interface of the quantum dot and barrier material for different shaped quantum dots (a) Lens shaped;(b) Conical shaped;(c) Cylindrical shaped;(d) Pyramid shaped

由于几何形状的差别是导致量子点应力场分布不一致的因素,因此有必要研究沿量子点边界的路径上应力场分布变化的情况.我们定义周边路径是在量子点的二维剖面上,从量子点左下角为起点,沿量子点与势垒材料的边界顺时针再次回到起点位置的一条闭合回路.由于量子点形状不同,所以周边路径的总长度也不同.

定量描述四种不同形貌量子点的应变在各自周边路径的分布见图 5.尽管量子点形状相差很大,但静水应变基本不受几何形状的影响,极值幅度为 -0.02 . ϵ_{xx} 和 ϵ_{zz} 分量沿各自周边路径有明显的对称性,主要表现在量子点的左侧和右侧,以及量子点底边的左侧和右侧.由于几何形貌的原因,应变分量的极值差别很大,但都出现在路径的拐点上,对于平滑的拐点,如透镜量子点,应变分布过渡也相对平滑,如图 5(a) 所示.对于非平滑拐点,透镜形量子点底部顶角的拐点、锥形量子点顶部的拐点、圆柱形和金字塔形状四个顶角的拐点应变分布都有大的跃变.由于实验测得的应变分布多为破坏性测量,因此计算结果与实验数据比较存在一定困难,我们将有限元法计算得到的结论与利用解析连续弹性理论计算得到的结果进行比较,结论基本一致.由于材料参数的不同,无法直接比较计算结果,在我们已经发表的文献中,我们将有限元法计算得到的 InAs/GaAs 量子点系统与其他方法做了比较,验证了我们计算的正确性^[9].

下面讨论切向应变分量的分布情况,由于量子点的切向应力主要集中在量子点的边界,中心轴路径上的切向应变 ϵ_{xz} 的最大值与 ϵ_{xx} 和 ϵ_{zz} 的最大值相差两个数量级,因此中心轴路径的切向应变可以忽

略.作为示例,图 6 给出了金字塔形状量子点 ϵ_{xz} 切应变分量的分布.

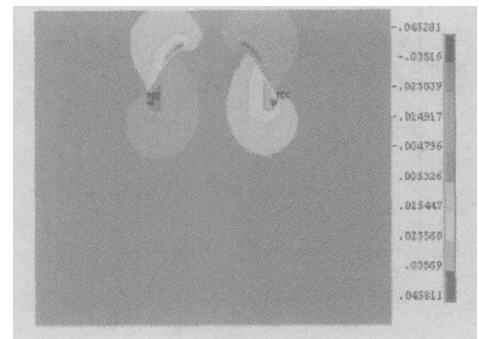
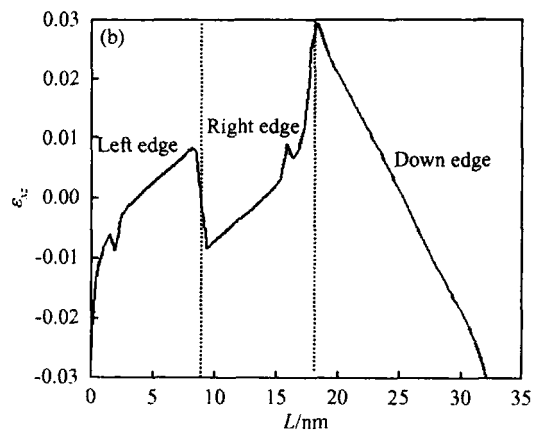
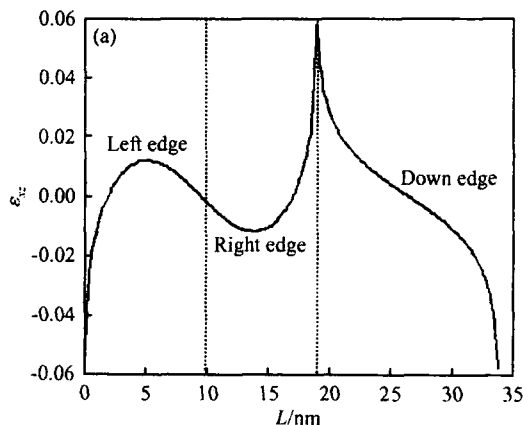


图 6 金字塔量子点 ϵ_{xz} 切应变分布图

Fig. 6 ϵ_{xz} shear strain distribution of the pyramid quantum dot

图 7 定量给出了四种量子点形态在周边路径上的切应变分布情况.我们对每个周边路径根据拐点的位置进行了区域划分,如图 7 中的点线所示,将区域分别表示为左边界、右边界、上边界和下边界.从图中可以看出透镜形和锥形只划分了三个区域,左右边界和下边界.两者切应变分布的明显差别在于左侧和右侧交界处,透镜形量子点的切应变分布有类似正弦函数的平滑过渡,而锥形量子点在交界处的切应变类似于锯齿波.可以看出如果将坐标原点水平平移到左右两侧交点处,则左右两侧的切应变分布关于新的坐标原点对称,底边界两侧的切应变值对称分布.对于圆柱形和金字塔形量子点,划分为四个区域,每个区域都类似于一个正切函数或余切函数,对应的切应变的零点位置大致位于每条边界的中点.无论任何形貌的量子点其切应变的奇点值都位于周边边界的拐点位置.



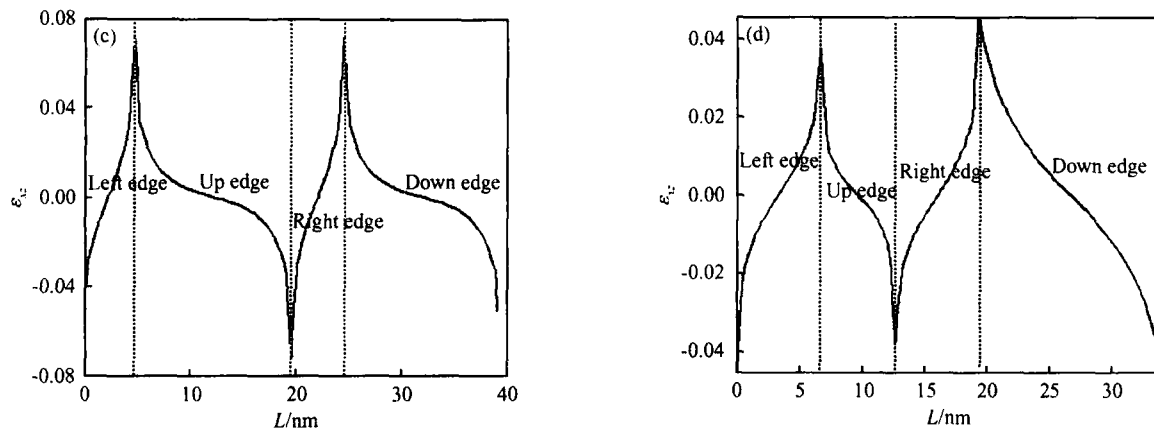


图 7 四种不同形态量子点 ϵ_{xz} 切向应变分量沿材料界面路径的分布 (a) 透镜形; (b) 锥形; (c) 圆柱形; (d) 金字塔形

Fig. 7 ϵ_{xz} shear strain along the interface of the quantum dot and barrier material for different shaped quantum dots (a) Lens shaped; (b) Conical shaped; (c) Cylindrical shaped; (d) Pyramid shaped

4 结论

采用了有限元模型对不同形态自组织量子点的应变场分布进行了系统的研究. 结果表明, 静水应变分量无论在中心轴路径还是在周边路径基本不受量子点几何形貌的影响. 中心轴路径和量子点内部的切向应变很小, 其最大值比对应的非切应变最大值小两个数量级, 因此切应变可以忽略. 切应变分量主要产生于量子点的边界, 其极值位于量子点的顶角. 在各自边界中心位置, 切应变非常小, 可以忽略. 非切应变在量子点内部和量子点盖层附近受量子点几何形貌的影响较大, 在基底长度一致的情况下横向尺寸变化越快, 最终横向尺寸越小, 盖层附近应变分布越大, 但衬底材料的应变分布几乎不受量子点形貌的影响.

参考文献

- [1] Wang Z G. Controllable growth of semiconductor nanometer structures. *J Synthetic Crystals*, 2002, 31(3) : 208 (in Chinese) [王占国. 半导体纳米结构的可控生长. *人工晶体学报*, 2002, 31(3) : 208]
- [2] Noda S, Abe T, Tamura M. Mode assignment of excited states in self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys Rev B*, 1998, 58(11) : 7181
- [3] Tadic M, Peeters F M, Janssens K L. Effect of isotropic versus anisotropic elasticity on the electronic structure of cylindrical InP/InGaP self-assembled quantum dots. *Phys Rev B*, 2002, 65(1) : 16533
- [4] Gong Qian, Liang Jiben, Xu Bo, et al. The results analysis of

InAs quantum dot by the atom force microscope. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1999, 20(8) : 622 (in Chinese) [龚谦, 梁基本, 徐波, 等. InAs 量子点的原子力显微镜测试结果分析. *半导体学报*, 1999, 20(8) : 622]

- [5] Chang Kai, Xia Jianbai. The effects of electric field on the electronic structure of a semiconductor quantum dot. *J Appl Phys*, 1998, 84(3) : 1454
- [6] Yu Wenbin, Madhukar A. Molecular dynamics study of coherent island energetics, stresses, and strains in highly strained epitaxy. *Phys Rev Lett*, 1997, 79(5) : 905
- [7] Andreev A D, Downes J R, Faux D A, et al. Strain distribution in quantum dots of arbitrary shape. *Phys Rev B*, 1999, 86(1) : 15851
- [8] Grundmann M, Stier O, Bimberg D. InAs/GaAs pyramidal quantum dots: strain distribution, optical phonons and electronic structure. *Phys Rev B*, 1995, 52(16) : 11969
- [9] Liu Yumin, Yu Zhongyuan, Yang Hongbo, et al. Elastic strain field distribution of a self-organized growth lensed-shaped quantum dot by finite element method. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2005, 26(7) : 1317

附录 A : 应变定义式以及数值连续弹性理论

实际研究的半导体量子点材料主要有两种晶体结构: 立方对称和六角对称, 前者如 InAs/GaAs 材料, 后者主要为含氮半导体材料, 如 GaN/AlN 材料. 本文主要考虑立方对称晶体. 对于立方晶体, 独立的弹性劲度系数有三个, 将二阶应力和应变张量写成如下的矢量形式:

$$\begin{aligned}
&= \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \partial u / \partial x \\ \partial v / \partial y \\ \partial w / \partial z \\ (\partial u / \partial y + \partial v / \partial x) / 2 \\ (\partial v / \partial z + \partial w / \partial y) / 2 \\ (\partial u / \partial z + \partial w / \partial x) / 2 \end{pmatrix} \\
&= \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} \end{pmatrix} = D \begin{pmatrix} u_0 \\ v_0 \\ w_0 \end{pmatrix} + 0 \quad (A1)
\end{aligned}$$

式中 u, v, w 分别表示在选定位置处 x, y 和 z 方向的位移. 不加说明, 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, 静水应变 $\epsilon_{hy} = \epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}$. 应力分量 σ_{ij} ($i, j = x, y, z$) 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:

$$D = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} \end{pmatrix} \quad (A2)$$

根据连续弹性理论, 将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

$$U = \frac{1}{2} \iiint_V (\sigma_{ij} - \sigma_{ij}^0) dx dy dz \quad (A3)$$

(A1), (A3) 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 $\epsilon_0 = \epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = (a_{dot} - a_{sub}) / a_{sub}$, 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. 整个体系的初始应力为 0. 因此初始应变和应力就是体系的初始载荷. 将式 (A3) 展开得:

$$\begin{aligned}
U &= \frac{1}{2} \iiint_V [C_{11} (\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + \\
&C_{12} (\epsilon_{xx} \epsilon_{yy} + \epsilon_{yy} \epsilon_{zz} + \epsilon_{zz} \epsilon_{xx}) + \\
&2 C_{44} (\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{zx}^2) - \\
&2 \sigma_0 (C_{11}/2 + C_{12}) (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) + \\
&3 \sigma_0^2 (C_{11}/2 + C_{12})] dx dy dz \quad (A4)
\end{aligned}$$

将弹性能的最小化问题转化为求系统的线性方程, 并使问题的解满足

$$\frac{dU}{du(i, j, k)} = \frac{dU}{dv(i, j, k)} = \frac{dU}{dw(i, j, k)} = 0 \quad (A5)$$

其中 i, j, k 代表体系 x, y, z 空间位置的坐标. 在边界条件处理上, 衬底底部位移为 0, 侧面采用周期边界条件, 位移为 0. 针对有限元法, 具体求解过程如下: 首先将材料体系按网格划分成网格单元, 每个单元的应变, 位移等数据由单元节点的插值表示. 这样这个体系的应变能可以由 (A4) 式给出. 利用式 (A5) 得到的耦合线性方程可以通过现成的数值技术 (如共轭梯度算法或超连续松弛迭代算法) 求解系统的应变能极小值, 求得极小值状态下对应的位移后就可以通过 (A1) 式进一步求出每个位置的应变分布. 如果势垒材料选取的足够大, 那么可以忽略边界条件的影响. (A4) 式中最后一项为常数, 因此在计算能量最小化过程中可以略去. 其最小化问题可以非常简单地利用共轭梯度算法求得. 我们在有限元计算过程中利用量子点材料的膨胀表示初始应变, 令量子点材料热膨胀系数满足晶格失配的绝对值, 同时令温度升高 1, 这样初始应变恰好为材料的晶格失配.

Influences of Differently Shaped Quantum Dots on Elastic Strain Field Distributions^{*}

Liu Yumin^{1,2,†}, Yu Zhongyuan^{1,2}, Yang Hongbo^{1,2}, and Huang Yongzhen³

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

(2 Key Laboratory of Ministry of Education for Optical Communication and Lightwave Technologies, Beijing 100876, China)

(3 State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: Adopting the two-dimensional axis-symmetrical model, a systematic analysis of the elastic strain distribution of geometrically differently shaped quantum dots is conducted using the finite element method. The detailed results for the elastic strain distribution of lens, cylinder, pyramid, and cone-shaped quantum dots are given. These show that the shape of the quantum dot has obvious influences on both the normal and shear strain distributions, while not affecting the hydrostatic strain distributions. The hydrostatic strain distribution is almost the same in both the center axis and circumjacent path. The shear strain distributions are focused on the circumjacent path, and the extremas are located in the inflexion of the circumjacent path, while the other parts of the quantum dot, including the path along the center axis, have no shear strain.

Key words: strain; quantum dot; self-organization; low dimension material

PACC: 0365; 2110D; 7280E

Article ID: 0253-4177(2005)12-2355-08

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (No. 2003CB314901), the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2003AA311070), and the Open Project of the State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics

[†] Liu Yumin male, was born in 1976, lecturer. His main research areas are nonlinear optics, semiconductor optoelectronics, and the critical technology of high-speed optical communication. Email: liuyuminhqy@263.net

Received 14 April 2005, revised manuscript received 31 August 2005

©2005 Chinese Institute of Electronics