

GaN/AlN 量子点结构中的应变分布和压电效应*

梁 双 吕燕伍†

(北京交通大学物理系, 北京 100044)

摘要: 从 III-V 族氮化物半导体压电极化对应变的依赖关系出发, 采用有限元方法计算了 GaN/AlN 量子点结构中的应变分布, 研究了其自发极化、压电极化以及极化电荷密度. 结果表明, 应变导致的压电极化和 III-V 族氮化物半导体所特有的自发极化将导致电荷分布的变化, 使电子聚集在量子点顶部, 空穴聚集在量子点下面的湿润层中, 在量子点结构中产生显著的极化电场, 并讨论了电场的存在对能带带边的形状以及能级分布的影响.

关键词: GaN/AlN 量子点结构; 应变; 自发极化; 压电极化

PACC: 7280E; 7340L; 7760

中图分类号: O471 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-4177(2007)01-0042-05

1 引言

宽带隙氮化物半导体氮化镓(GaN)和氮化铝(AlN)在实验和理论上得到普遍的重视, 它们具有独特的性质, 如高电子迁移率、宽能隙和稳定的温度特性, 使它们可用于工作波段从蓝光到紫光的激光器、发光二极管以及高温光电器件, 有着巨大潜在的应用前景. 而低维半导体材料制备技术——分子束外延(MBE)及金属有机物化学气相沉积(MOCVD)的发展与成熟, 进一步推动了人们对 GaN/AlN 量子点结构的研究. 由于 GaN 和 AlN 的六角晶体结构的低对称性, 在 GaN, AlN 等氮化物半导体中存在着显著的自发极化^[1], 而由于氮化物半导体的压电常数远远大于其他半导体的压电常数, 这意味着很小的应变就能产生很强的电场, 压电场和自发极化电场的共同作用, 使 GaN/AlN 量子点结构中产生很强的内建电场, 因此对 GaN/AlN 量子点结构的应变分布和内建电场的研究有重要的意义, 将有助于基于 GaN/AlN 量子点结构的光电器件的研制, 诸如量子级联激光器^[2]、量子信息探测器^[3]等光电器件.

与大量的实验相比, 理论研究还相对较少, 有人用格林函数法^[4]计算了 GaN/AlN 量子点结构的实空间应变分布, 但他假设量子点和基质是各向同性的, 而且具有相同的弹性常数, 然而这一条件通常影响计算得到的应力应变的真实程度. 还有人用有限差分法^[5]和分子动力学理论^[6]来计算, 分子动力学方法需要两个或多个原子相互作用势函数来确定量

子点的力学性质, 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的不同, 在量子点系统原子数目较多情况下, 分子动力学方法的计算效率将急剧下降, 故分子动力学方法适合描述孤立的小体积量子点系统. Andreev 等人^[7]研究氮化物半导体的量子点时, 采用格林方程计算了 k 空间的应变分布和电子谱, 以及压电效应, 然而实空间的应变分布对量子点性质的研究有重要意义. 有限元法在现代计算技术领域有着广泛的应用, 具有功能强大、计算速度快、与量子点的大小形状无关、不需要太多假设条件等优点. 采用有限元软件 ANSYS 划分网格还可以计算应变^[8]. 本文采用 ANSYS 划分网格, 使用数值方法编程计算了 GaN/AlN 量子点结构中的应变分布, 极化电荷密度, 而且我们的方法可以进一步计算量子点的电子结构和波函数.

2 GaN/AlN 量子点的结构模型与计算

GaN/AlN 量子点的结构如图 1 所示, 在本模型中, 计算所采用的量子点是自组装生长的量子点, 它具有被截顶的六边金字塔形状, 且它的下表面正六边形边长为 7.5nm, 上表面边长为 1.5nm, 高为 3nm, 生长在 1nm 厚度的湿润层上. 本文中我们假设量子点之间的距离足够大, 因此仅考虑单个量子点的效应, 忽略量子点之间的耦合效应.

我们采用连续介质模型来计算量子点中的弹性形变, 在量子点异质结中, 晶格常数是随着坐标变化的, 在边界处是阶跃变化的, 即基质和量子点有不同

* 国家自然科学基金资助项目(批准号:60376014)

† 通信作者, Email: ywlu@bjtu.edu.cn

2006-07-21 收到, 2006-09-20 定稿

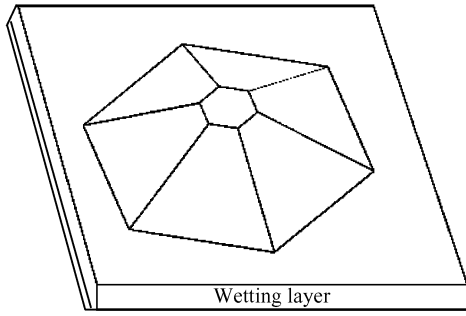


图 1 WZ GaN/AlN 量子点的结构示意图

Fig. 1 Schematic shape of WZ GaN/AlN QDs

的晶格常数,这就导致了量子点系统中弹性势能的出现^[9].

对于纤锌矿结构(WZ)的 GaN 量子点,弹性常数张量可以表示为

$$C_{ij} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11} - C_{12}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \quad (1)$$

假设 WZ 型量子点生长基质的晶格常数为 a_{matrix} 和 c_{matrix} ,则初始应变 $\boldsymbol{\varepsilon}^{(0)}$ 可以表示为

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{(0)} = \left(\frac{a(\mathbf{r}) - a_{\text{matrix}}}{a_{\text{matrix}}}, \frac{a(\mathbf{r}) - a_{\text{matrix}}}{a_{\text{matrix}}}, \frac{c(\mathbf{r}) - c_{\text{matrix}}}{c_{\text{matrix}}}, 0, 0, 0 \right)^T \quad (2)$$

根据弹性力学中的最小势能原理,可以计算出应变张量.应变可以导致极化,我们可以根据计算出来的应变张量计算极化场,它与应变张量具有如下的线性关系

$$P_i^{\text{strain}} = \sum_k e_{ik} \varepsilon_k \quad (3)$$

对于具有 WZ 对称性的晶体,压电系数仅有 3 个独立的分量, e_{15} , e_{31} , e_{33} , 所以,由应变产生的极化强度可以表示为

$$\begin{aligned} P_x &= e_{15} \varepsilon_6 \\ P_y &= e_{15} \varepsilon_5 \\ P_z &= e_{31} (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) + e_{33} \varepsilon_3 + P_{\text{sp}} \end{aligned} \quad (4)$$

除了应变产生的极化外, WZ 型氮化物半导体还存在自发极化^[1] P^{spont} ,但由于自组织 WZ 型量子点通常是沿着(0001)方向生长,在这种情况下,自发极化仅有(0001)方向的分量不为 0,并且可设 $P_z^{\text{spont}} = P_{\text{sp}}$,其中 P_{sp} 为一个常数且对于每一种材料都不相同,因此总的极化强度可以写成

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{\text{strain}} + \mathbf{P}^{\text{spont}} \quad (5)$$

由于上述的极化使得压电势的产生,假如体系中没

有自由电荷,压电势 V_p 可以通过解 Poisson 方程得到,即

$$-\nabla \cdot (\hat{\varepsilon}_{\text{stat}} \nabla V_p(\mathbf{r})) = -4\pi \nabla \cdot \mathbf{P} \quad (6)$$

其中 $\hat{\varepsilon}_{\text{stat}}$ 是静态介电张量,并且在 WZ 型材料中它有如下的形式

$$\hat{\varepsilon}_{\text{stat}} = \begin{pmatrix} \hat{\varepsilon}_{\text{stat}}^{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \hat{\varepsilon}_{\text{stat}}^{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \hat{\varepsilon}_{\text{stat}}^{\parallel} \end{pmatrix} \quad (7)$$

可以看出它是各向异性的.在(6)式中,右边的一项表示体电荷密度,此外在量子点的分界面上,由于极化强度的跃变,还存在表面电荷,表面电荷密度 σ_p 为

$$\sigma_p = \mathbf{n} \cdot (\mathbf{P}_{\text{matrix}} - \mathbf{P}_{\text{dot}}) \quad (8)$$

在求解 Poisson 方程(6)时,需要考虑表面电荷对电势的影响.

在本文中所有的计算都是采用有限元的方法计算,具体的计算流程分为以下几个步骤:

(1)将整个区域离散化,即分成四面体的体积元,以位移矢量 \mathbf{u} 为自变量,计算公式 $F_{\text{elastic}} = \frac{1}{2} \int_v d\mathbf{r} \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r})^T \mathbf{C} \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r})$ 中的积分 F_{elastic} ;

(2)通过 $\partial F_{\text{elastic}} / \partial \mathbf{u} = 0$, 求出 F_{elastic} 的极值,将问题转化为一个线形系统问题 $\mathbf{A} \mathbf{u} = \mathbf{R}$;

(3)当远离量子点时, $\mathbf{u} \rightarrow 0$, 在此边界条件下解在第 2 步中得到的线性方程组便可以求出位移场;

(4)根据公式 $\boldsymbol{\varepsilon}^{(u)} = (\varepsilon_{xx}, \varepsilon_{yy}, \varepsilon_{zz}, 2\varepsilon_{xy}, 2\varepsilon_{yz}, 2\varepsilon_{xz})^T = \mathbf{A}^T \mathbf{u}$ 求出应变场;

(5)根据公式 $\rho = -\nabla \cdot \mathbf{P}$ 求体电荷密度.

建立有限单元方程主要是利用变分方法,由该方法将偏微分方程转化为等效的积分方程,即偏微分方程的“弱形式”,然后在离散的单元上通过近似的场函数求解这个积分方程,将积分方程又转化为等效的线性方程组或者广义的线性本征值问题,从而可以通过线性代数的相关知识便可以解出该偏微分方程.

3 结果与讨论

本文从连续介质弹性理论出发,利用有限元方法求解了应变场的空间分布,再由应变导致的极化加上氮化物半导体所特有的自发极化,求解出极化电荷密度.材料的计算参数见表 1.

图 2 为沿量子点中心轴路径 z 方向的应变张量分量, -1 到 0 为 GaN 湿润层, 0 到 3 为量子点,其他为 AlN 衬底和盖层.由图 2 可以看出,沿中心轴 ε_{xx} 和 ε_{yy} 重合为一条线,说明有相同的应变分量 $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$, GaN 量子点和湿润层经历压缩应变($\varepsilon_{xx}, \varepsilon_{yy}$ 为

表 1 计算中所用到的 WZ GaN 和 WZ AlN 的数据,取自文献[10]

Table 1 Parameters of WZ GaN and WZ AlN, which are taken from Ref.[10]

Parameter	WZ GaN	WZ AlN	Parameter	WZ GaN	WZ AlN
a/nm	0.3189	0.3112	C_{44}/GPa	105	116
c/nm	0.5185	0.4982	$e_{15}/(\text{C} \cdot \text{m}^{-2})$	-0.49	-0.60
C_{11}/GPa	390	396	$e_{31}/(\text{C} \cdot \text{m}^{-2})$	-0.49	-0.60
C_{12}/GPa	145	137	$e_{33}/(\text{C} \cdot \text{m}^{-2})$	0.73	1.46
C_{13}/GPa	106	108	$P_{\text{sp}}/(\text{C} \cdot \text{m}^{-2})$	-0.029	-0.081
C_{33}/GPa	398	373	$\epsilon_{\text{stat}}^{\parallel}$	10.01	8.57
			$\epsilon_{\text{stat}}^{\perp}$	9.28	8.67

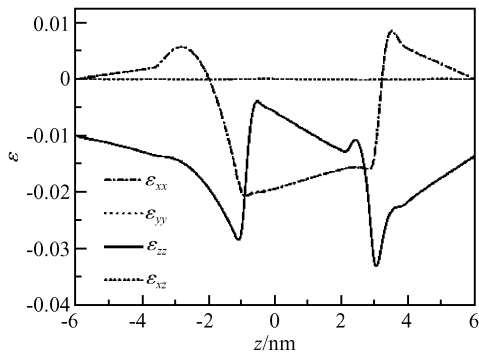


图 2 GaN/AlN 量子点结构中应变张量随量子点的中心轴 z 方向 ($x=0, y=0$) 的变化

Fig. 2 Position dependence of the strain tensor components for the GaN/AlN QD structure along the z direction through the pyramid center ($x=0, y=0$)

负),而在 AlN 衬底和盖层中表现为张应变,这与 GaN, AlN 晶格常数的相对大小、连续弹性理论对量子点形成的解释是符合的.关于 ϵ_{zz} ,情况便不一样了:鉴于二维的湿润层在生长方向上是抗拉力的,但量子点区域是压缩的,这是由于金字塔的侧面导致的,应变分量 ϵ_{zz} 都是负值,且极大值出现在 AlN 在与 GaN 交界处,而沿中心轴方向,不存在应变分量 ϵ_{xz} .为了给出更清晰的应变张量分布,图 3 示出了应变分量在 $x-z$ 平面上的等值线.如图 3(a)所示的 ϵ_{xx} ,可以看出量子点边界的应变比量子点中心要大,而图 3(b)所示的 ϵ_{yy} 表现为量子点中心有较大的应变,从图 2 可知在量子点的中心线上它们有相同的应变值,说明在量子点的边界, ϵ_{xx} 要比 ϵ_{yy} 大得多,由于 x 轴平行于一对量子点平面,而 y 轴和每个平面都有夹角,导致了 ϵ_{xx} 和 ϵ_{yy} 的值远离中心,接近边界时产生了明显的分离.而在湿润层中表现了更大的应变,主要是由于湿润层的厚度比 AlN 的厚度小很多, ϵ_{xx} 极大值出现在量子点下顶角附近,而 ϵ_{yy} 的值在湿润层中的分布均匀.在图 3(c)中, AlN 衬底和盖层中有较大的压缩应变,而在量子点中相对小一些,在量子点的中心轴上都是负值,但在湿润层中

远离中心的位置表现出正值,即拉伸应变.应变分量 ϵ_{xz} 如图 3(d)所示,可以清晰地看出,量子点的一边压缩,一边膨胀,而对应的 AlN 有相反的情况,对于 ϵ_{yz} ,在 $x-z$ 平面上没有表现出任何应变,但在 $y-z$ 平面上与 ϵ_{xz} 在 $x-z$ 平面上有相似的应变分布.在量子点的中心线上没有任何剪切应变.我们的结果和 Andreev 等人^[11]的结论进行了比较,结果基本一致,而且我们的结果可以从整体结构上准确地看出 GaN/AlN 量子点结构中应变分布.

量子点结构中应变场导致了压电极化的出现,在 GaN 量子点中压电极化的值约为 $-0.025\text{C}/\text{m}^2$,而 GaN 的自发极化为 $-0.029\text{C}/\text{m}^2$ (表 1),可见自发极化对总的极化场有着不可忽略的贡献.为了明确极化对电荷分布的影响,图 4 给出了 $x-z$ 平面上电荷密度的二维等值线图.可以看出在量子点的顶部有高浓度的电子,量子点顶部中心的电子密度为 $1.2 \times 10^{13}/\text{cm}^2$,而空穴聚集在湿润层以下 AlN 衬底中,空穴密度为 $0.7 \times 10^{13}/\text{cm}^2$,这是自发极化和压电极化共同作用的结果.极化场导致量子点内产生 MV/cm 的内建电场,使电子和空穴显著空间分离,而且此电场的方向是由量子点的顶部指向底部的,因此电子聚集在顶部,空穴分布在底部以下.而该电场的存在,势必使量子点顶部的能量降低,量子点底部的能量升高,使沿 z 方向的导带和价带倾斜,减小了量子点导带和价带的能量差,从而使子带带间的激发光谱红移.而应变产生的电子哈密顿量 $\hat{H}^{(e)} = a_c^{\parallel} \epsilon_{zz}(\mathbf{r}) + a_c^{\perp} (\epsilon_{xx}(\mathbf{r}) + \epsilon_{yy}(\mathbf{r}))$ 和压电场产生的压电极化能 $eV_p(\mathbf{r})$ 将被考虑到求解电子态的波动方程哈密顿量中,从而改变电子能级和电子的波函数.我们的有限元计算方法可以进一步有效地计算电子能级和波函数,结果表明,当考虑到形变势和压电极化能时,电子能级间距增大,简并能级分裂^[12],将进一步影响电子子带间的光谱特性.

体电荷密度的产生主要是由于应变张量的梯度不为零导致的,此外在点和基质的交接面上,还存在高密度的面电荷,而面电荷产生的原因是由于点和基质的压电系数张量的不连续,自发极化的不连续,初始应变张量不同导致的.由于在量子点边界上,极化电荷产生的势场,对电子、空穴都起到了强烈的横向限制效应,使量子点的有效尺寸小于它的实际尺寸,量子效应进一步加强.

4 结论

本文利用有限元方法研究了 GaN/AlN 量子点结构中的应变场和压电效应,准确地计算了 GaN/AlN 量子点结构中的应变分布,以及极化产生的极化电荷密度.结果表明,压电极化和自发极化的值是

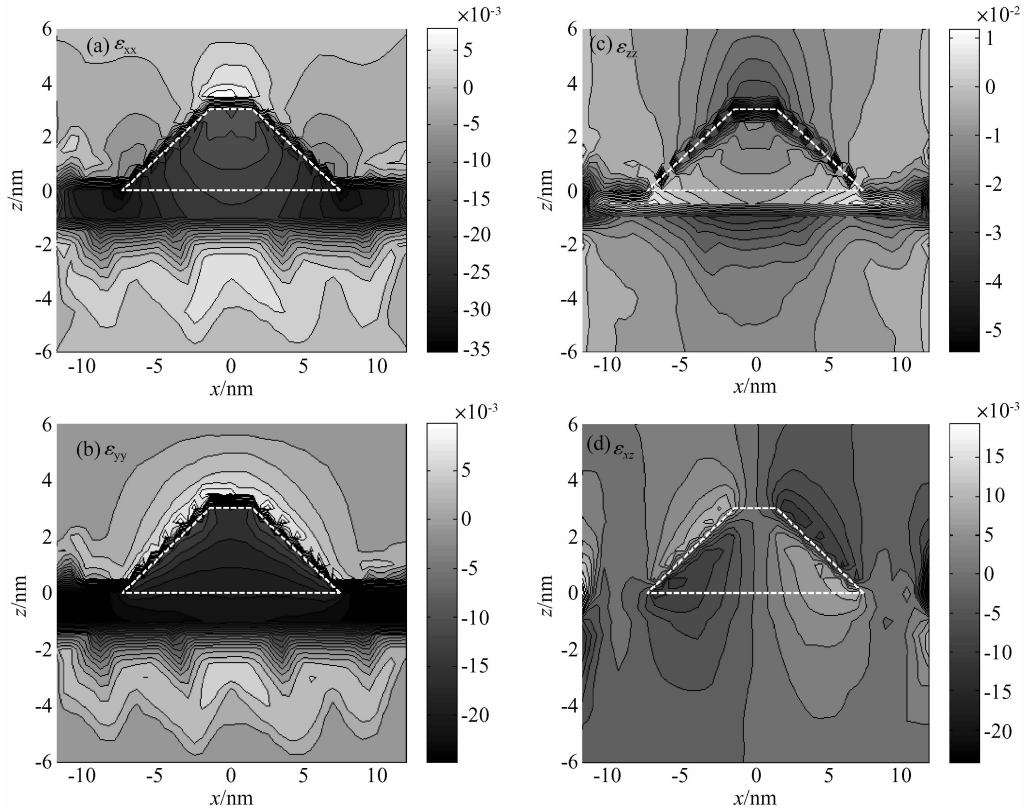


图 3 GaN/AlN 量子点结构中应变分量在 $x-z$ 平面 ($z=0$) 的等值线图

Fig. 3 Contour plots of the variation in strain tensor components for GaN/AlN QD

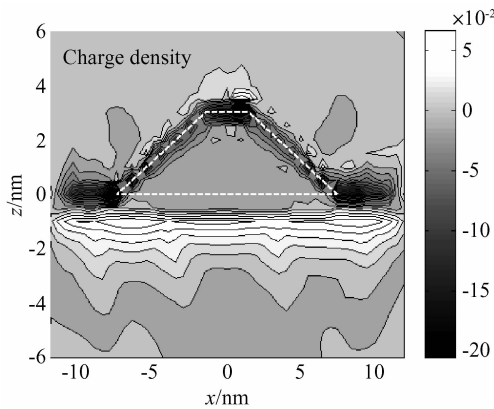


图 4 GaN/AlN 量子点结构中电荷密度在 $x-z$ 平面上的分布

Fig. 4 Distribution of charge density for GaN/AlN QD in the $x-z$ plane ($y=0$)

相当的, 它们的共同作用导致了空间电荷的分离, 使高密度的电子聚集在量子点顶部, 密度高达 $1.2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, 空穴则分布在湿润层的底部, 密度为 $0.7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. 应变和压电场导致的能带变化, 使能带发生倾斜, 加强了量子点内部的量子限制效应, 讨论了量子效应对光谱的影响.

参考文献

- [1] Bernardini F, Fiorentini V. Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides. *Phys Rev B*, 1997, 56 (16): 10024
- [2] Lu Y, Sun G. Design and simulation of terahertz GaN/Al_{0.15}Ga_{0.85}N quantum cascade laser. 13th International Conference on Semiconducting and Insulating Materials, Beijing, 2004: 284
- [3] D'Amico I, Rossi F. All-optical single-electron read-out devices based on GaN quantum dots. *Appl Phys Lett*, 2002, 81: 5213
- [4] Downes J R, Faux D A, O'Reilly E P. A simple method for calculating strain distributions in quantum dot structures. *J Appl Phys*, 1997, 81(10): 6700
- [5] Grundmann M, Stier O, Bimberg D. InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure. *Phys Rev B*, 1995, 52: 11969
- [6] Yu Wenbin, Madhukar M. 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, O'Reilly E P. Theory of the electric structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots. *Phys Rev B*, 2000, 62 (23): 15851
- [8] Liu Yumin, Yu Zhongyuan, Yang Hongbo, et al. Elastic strain field distribution of a self-organized growth lens-shaped quantum dot by finite element method. *Chinese Jour-*

- nal of Semiconductors, 2005, 26(7):1317
- [9] Landau L D, Lifshitz E M. Theory of elasticity. 3rd ed. Pergamon, Oxford, UK, 1986
- [10] Fonoberov V A, Balandin A A. Excitonic properties of strained wurtzite and Zinc-blende GaN/Al_xGa_{1-x}N quantum dots. J Appl Phys, 2003, 94(11):7178
- [11] Andreev A D, O'Reilly E P. Theoretical study of the electronic structure of self-organized GaN/AlN QDs. Nanotechnology, 2000, 11:256
- [12] Lu Yanwu, Cai Lin, Liang Shuang. Strained and piezoelectric characteristics of nitride quantum dots. Chin Phys Lett, 2006, 23(4):956

Strain Distribution and Piezoelectric Effect in GaN/AlN Quantum Dots*

Liang Shuang and Lu Yanwu[†]

(Department of Physics, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China)

Abstract: An effective method is introduced to investigate the strained fields and piezoelectric effect in GaN/AlN quantum dots (QDs) with hexagonal truncated pyramid shape. The strain distribution and charge density were calculated using the finite element method (FEM). It is shown that spontaneous and piezoelectric polarization resulted in the separation of electrons and holes, bringing about a strong built-in electric field in the QD structures. The strain field and piezoelectric potential influence the distribution of charges. The electrons are localized near the top of the QDs, and the holes are localized in the wetting layer just below the pyramid. Furthermore, the piezoelectric potential in the QDs affects the electron levels and band edge shape.

Key words: GaN/AlN quantum dot; strain; spontaneous polarization; piezoelectric polarization

PACC: 7280E; 7340L; 7760

Article ID: 0253-4177(2007)01-0042-05

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 60376014)

[†] Corresponding author. Email: ywlu@bjtu.edu.cn

Received 21 July 2006, revised manuscript received 20 September 2006