

# Si(001) 斜切衬底上 Ge 量子点的固相外延生长

胡冬枝 赵登涛 蒋伟荣 施 斌 顾骁骁 张翔九 蒋最敏

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

**摘要:** 研究了 Si(001) 面偏[110] 方向 6° 斜切衬底上 Ge 量子点的固相外延生长。实验结果表明, 在 Si(001) 6° 斜切衬底上固相外延生长 Ge 量子点的最佳退火温度为 640°C, 在斜切衬底上成岛生长的临界厚度低于在 Si(001) 衬底成岛生长的临界厚度, 6° 斜切衬底上淀积 0.7 nm Ge 即可成岛, 少于 Si(001) 衬底片上 Ge 成岛所需的淀积量。从 Ge 量子点的密度随固相外延温度的变化曲线, 得到 Ge 量子点的激活能为 1.9 eV, 远高于 Si(111) 面上固相外延 Ge 量子点的激活能 0.3 eV。实验亦发现, 在 Si(001) 斜切衬底上固相外延生长的 Ge 量子点较 Si(001) 衬底上形成的量子点的热稳定性要好。

**关键词:** 量子点; Ge; 固相外延

**PACC:** 6855; 7320; 6820

**中图分类号:** TN 304.054

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2002)06-0604-05

## 1 引言

硅衬底上外延生长 Ge 量子点, 在 Si 基光电子、微电子或单电子器件的研制与集成中有很好的应用前景。为了得到尺寸小、均匀性好以及密度高的量子点, 人们探索多种生长过程与方法, 周星飞等<sup>[1]</sup>研究了 B 原子对 Ge 量子点生长的影响。另外利用斜切形成台阶结构的衬底也是一种尝试。在 III-V 族纳米材料研究中, 叶念慈等<sup>[2]</sup>发现在偏离 GaAs(100) 面 4° 的衬底上生长的 InGaAs 量子点具有最好的热稳定性, 且量子点的光致发光呈现较强的三维量子局限效应。Zhu 等<sup>[3,4]</sup>在 Si(001) 分别向[110] 斜切 1.5°、2.0°、4.0° 的衬底上利用分子束外延(MBE) 方法生长 Ge 量子点, 对其形貌进行了分析, 得到一些有序排列的量子点。但是由于 Zhu 等是以 SiGe 合金层为缓冲层, 导致量子点的尺寸增大。

最近, Suzumura 等<sup>[5]</sup>利用固相外延研究了 Si(111) 面上 Ge 量子点的形成, 并与 MBE 方法生长的量子点进行了比较。在温度较高时, 固相外延可以得到密度更高的 Ge 量子点。

本文研究了在 Si(001) 偏[110] 方向 6° 斜切衬底上 Ge 量子点的固相外延生长, 得到了热稳定性和尺寸均匀性较好的 Ge 量子点。并且观察到在相同的生长条件下, 与 Si(001) 衬底相比, 外延生长的 Ge 在 Si(001) 6° 斜切衬底上更容易成岛。

## 2 实验

Ge 量子点的生长是在一台型号为 Riber EVA-32 的超高真空 Si 分子束外延系统中进行的。衬底为 Si(001) 向[110] 方向偏 6° 的 N 型衬底(以下简称 Si(001) 6° 斜切衬底), 电阻率为 1~5 Ω·cm。样品生长前, 衬底采用标准的 Shiraki 方法清洗, 并在超高真空中加热到 1000°C, 以去掉衬底表面的氧化层, RHEED 出现清晰的 2×1 再构图样。Ge、Si 分子束通过高能电子束轰击加热产生。首先生长 50 nm 的 Si 缓冲层, 然后在室温下淀积 0.9 nm 厚的 Ge 层, 淀积速率为 0.03 nm/s。在不同温度下原位退火进行固相外延生长一系列样品, 以研究不同退火温度对固相外延方法生长 Ge 量子点的影响。样品退火时间均为 3 min, 退火温度分别为 630、640、660 和

胡冬枝 女, 1971 年出生, 讲师, 目前从事 GeSi 材料的生长与结构表征。

2001-07-21 收到, 2001-09-25 定稿

©2002 中国电子学会

680℃, 并对Si(001)6°斜切衬底上固相外延Ge量子点的稳定性进行了研究。作为对比, 在同样的实验条件下, 在Si(001)衬底上640℃退火3min制备了比较样品, 以期研究斜切衬底对量子点生长的影响。

样品的表面形貌是用原子力显微镜(AFM)在接触模式下测量的, 原子力显微镜的型号为P47-SPM-MDT。样品喇曼谱的测量是在一台型号为Renishaw Ramascope喇曼谱仪上完成的, 激发光是Ar<sup>+</sup>激光器的514.5nm线, 激光功率为200kW/cm<sup>2</sup>, 光斑直径为1μm。

### 3 结果与讨论

如图1所示, AFM图像表明, 630℃退火3min, 固相外延的Ge层没有成岛, 表面依然平整。640℃退火3min, Ge层成岛, 岛的直径约为90nm, 高度约为14nm。由于AFM的针尖效应, 这个数值略微有些偏大。岛的尺寸均匀性较好, 偏差为±6%, 岛的密

度为 $4.7 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 。提高退火温度, 在660℃退火3min, 量子点的尺寸均匀性变差, 大的尺寸约为360nm, 小的约为90nm, 同时密度减小, 为 $1.0 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 。继续提高退火温度, 在680℃退火3min, 岛的尺寸进一步增加, 密度也更小, 为 $3.7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ 。可以看出随着退火温度的升高, 量子点间进一步集聚而形成较大的岛, 小的量子点则消失, 使得量子点的密度减小。根据量子点的密度随退火温度的变化曲线, 可以得到Si(001)6°斜切衬底上固相外延Ge量子点的激活能为1.9eV, 远高于Si(111)面上固相外延Ge量子点的激活能0.3eV。但是Si(111)面上固相外延的Ge量子点的均匀性始终不好<sup>[5]</sup>, 而在Si(001)6°斜切衬底上, 通过适当温度的固相外延, 可以得到均匀性好的量子点。我们认为这可能是Si(001)6°斜切衬底特殊的表面构形对量子点生长有一定的调制影响。衬底表面结构如图2所示, 和Si(001)及Si(111)衬底表面不同, Si(001)6°斜切衬底有特殊的长周期台阶结构。这种特殊的表面结构, 会在一定程度上对Ge量子点的生长有影响。

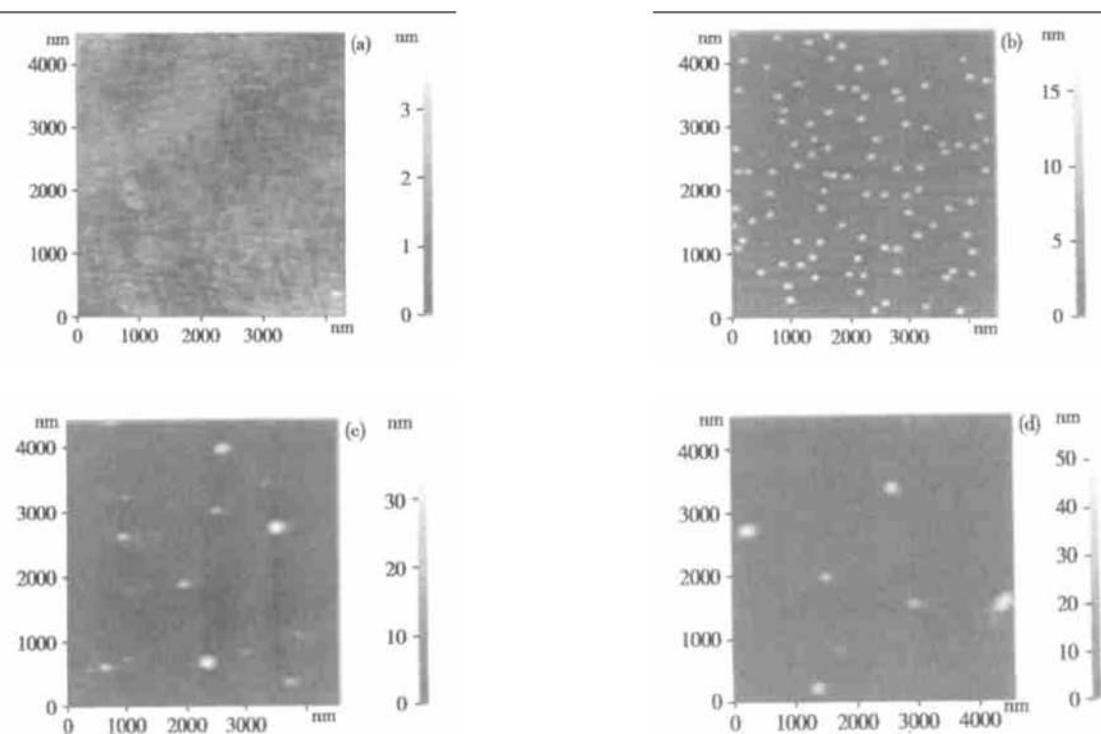


图1 在Si(001)6°斜切衬底上室温下淀积0.9nm Ge层, 经不同温度退火3min后的AFM形貌图 (a) 630℃; (b) 640℃; (c) 660℃; (d) 680℃

Fig. 1 AFM images of Ge quantum dots formed on 6°-off Si(001) substrate by depositing 0.9nm Ge film at RT, subsequently annealing at different temperature for 3min (a) 630℃; (b) 640℃; (c) 660℃; (d) 680℃

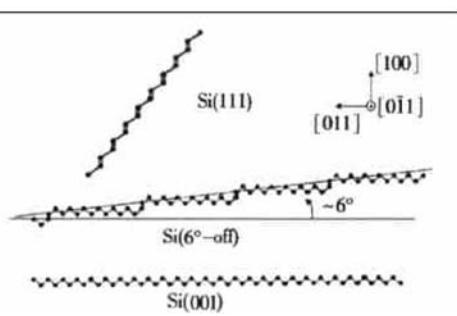


图 2 Si(001)、Si(001) 6°斜切和 Si(111) 衬底表面的原子结构模型

Fig. 2 Atomic model of the Si(001) (down), Si (6°-off) (middle) and Si(111) surfaces

同时, 我们对 Si(001) 6°斜切衬底上固相外延 Ge 量子点的稳定性进行了研究。作为比较, 在相同的实验条件下, 延长退火时间, 在 640°C 退火 30min 制备了比较样品。比较退火 3min 和退火 30min 样品的 AFM 图像, 没有观察到岛的尺寸的明显变化, 如图 3 所示。岛的密度虽然有变化, 也只是在同一数

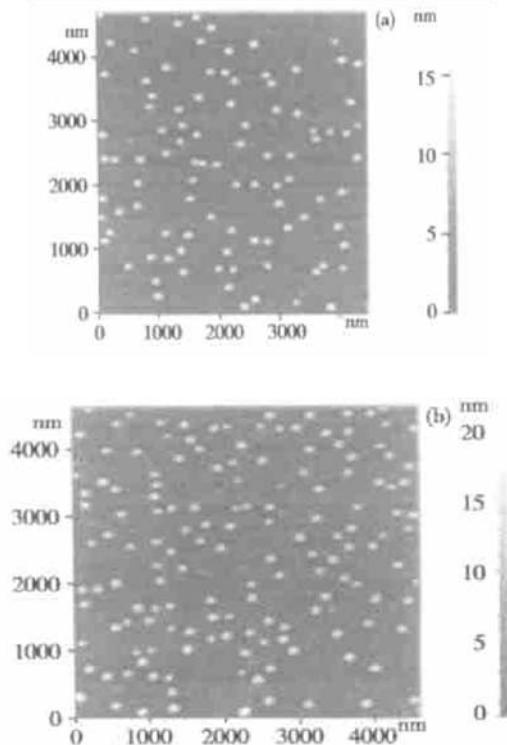


图 3 在 Si(001) 6°斜切衬底上室温下淀积 0.9nm Ge 层, 经 640°C 退火不同时间的 AFM 形貌图 (a) 退火 3min; (b) 退火 30min

Fig. 3 AFM images of Ge quantum dots formed on 6°-off Si(001) substrate by depositing 0.9nm Ge film at RT, subsequently annealing at 640°C for different times (a) 3min; (b) 30min

量级内增大。这与退火时间对 Si(001) 面上 Ge 量子点的尺寸及密度的影响不同, 在 Si(001) 面上的 Ge 量子点, 退火 30s 就可以观察到明显的变化<sup>[6]</sup>, 其尺寸变大, 密度变小。这一现象可以由台阶引入的势垒来解释。由于台阶的存在, 原子的迁移受到阻碍。Si(001) 6°斜切衬底表面上淀积吸附的 Ge 原子的扩散长度受到限制。尽管在此一个量子点占据了约 7 个台阶结构, 但是量子点之间的间隔最小也有 50nm, 这就意味着原子迁移需要跨越约 40 个台阶结构, 无疑这就增加了原子迁移的难度, 所以在 Si(001) 6°斜切衬底上形成的量子点热稳定性较好。也正由于此, 延长退火时间反而使量子点的密度有所增加。此外, 由于激活能与原子的迁移率密切相关, 在 Si(001) 6°斜切衬底上固相外延得到的 Ge 量子点的高激活能也反映了 Ge 的原子迁移需要克服更高的势垒, 从而使量子点表现出较好的热稳定性。

为考察斜切衬底对量子点生长的影响, 相同的实验条件下, 室温淀积 0.9nm 厚的 Ge 层, 比较在 Si(001) 6°斜切衬底和 Si(001) 衬底上同样 640°C 退火 3min 制备的样品。由图 4 的 AFM 图可以观察到, 两种衬底上都有 Ge 量子点生成。可是尽管生长条件完全相同, 在 Si(001) 衬底上生长的样品, 其量子点的密度和平均尺寸都小于在 Si(001) 6°斜切衬底上生长的样品。而喇曼光谱(图 5)显示, 两个样品中的 GeSi 原子之间的互扩散没有明显差别。为此, 减少 Ge 的淀积量至 0.7nm, 在 Si(001) 6°斜切衬底和 Si(001) 衬底上同样 640°C 生长了样品。生长条件完全相同, 只是衬底分别为 Si(001) 6°斜切衬底和 Si(001) 衬底。由 AFM 图(图 6)可以看到, 0.7nm 淀积量的 Ge 在 Si(001) 6°斜切衬底上已成岛, 而在 Si(001) 衬底上没有成岛。也就是说, 同样条件下, 在 Si(001) 6°斜切衬底上固相外延生长 Ge 量子点较 Si(001) 衬底上生长容易成岛, 下面我们仅从应变能的角度说明这一点。

为简单起见, 我们首先考虑在 Si(001) 面与 Si(111) 面淀积同样厚度的 Ge 层引入的应变能来说明此问题。众所周知, 由于 Ge 与 Si 存在 4.2% 的晶格失配, Ge 在 Si 表面上的外延生长模式为 S-K 生长模式, 即层加岛生长。Ge 在 Si 表面外延生长的应力随 Ge 层厚度的增加而增加。当外延 Ge 层达到其临界厚度时, 应力释放, 生长由层状变为岛状生长。Ge 在 Si(001) 衬底与 Si(111) 衬底外延生长的晶格失配度是一样的, 并且 Ge 在 Si 衬底的晶化生长是

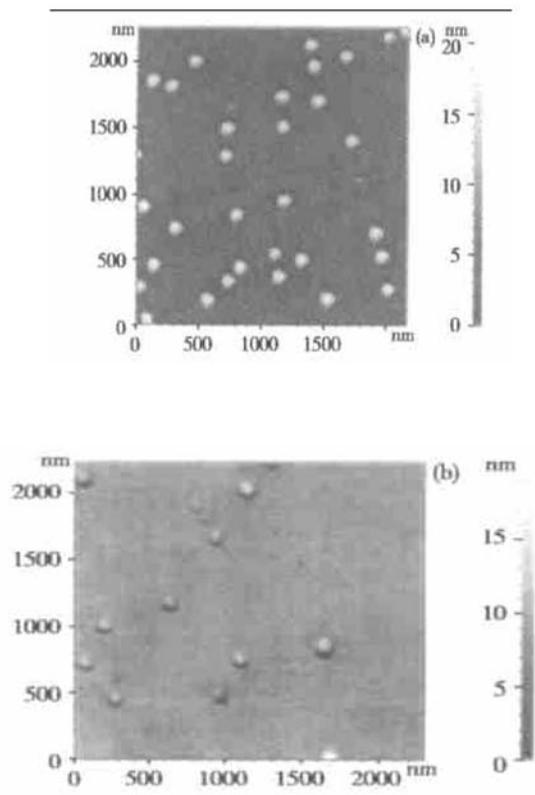


图4 在不同衬底上, 室温下淀积0.9nm Ge层, 经640°C退火3min的AFM形貌图 (a) Si(001) 6°斜切衬底; (b) Si(001)衬底

Fig. 4 AFM images of Ge quantum dots formed on different substrates by depositing 0.9nm Ge film at RT, subsequently annealing at 640°C for 3min (a) Si(6°-off) substrate; (b) Si(001) substrate

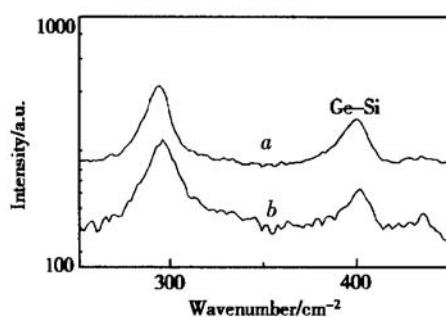


图5 在不同衬底上室温下淀积0.9nm Ge层, 经640°C退火3min后的喇曼光谱 a: Si(001) 6°斜切衬底; b: Si(001)衬底

Fig. 5 Raman spectra of Ge quantum dots formed on different substrates by depositing 0.9nm Ge film at RT, subsequently annealing at 640°C for 3min a: Si(001) (6°-off) substrate; b: Si(001) substrate

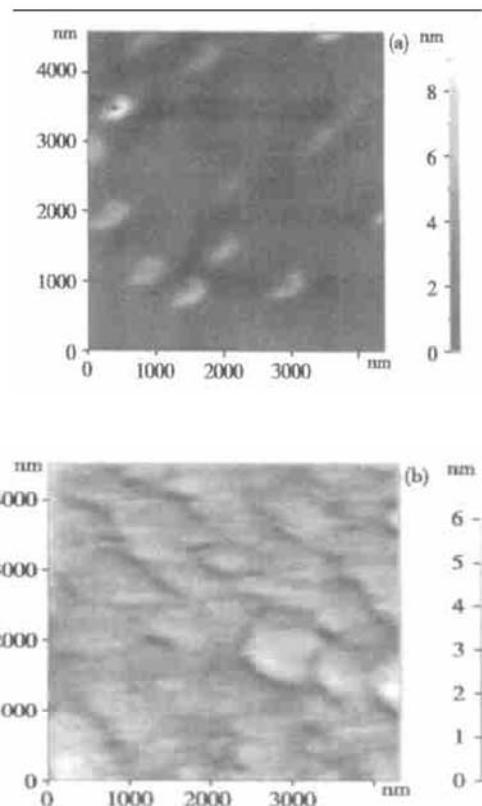


图6 在不同衬底上, 640°C淀积0.7nm Ge层的AFM形貌图 (a) Si(001) 6°斜切衬底; (b) Si(001)衬底

Fig. 6 AFM images of Ge quantum dots on different substrates, formed by depositing 0.7nm Ge film at 640°C (a) Si(6°-off) substrate; (b) Si(001) substrate

与衬底晶向相一致的。晶格失配体系中外延层的弹性应变能为  $U = \frac{1}{2}E\epsilon^2h$ , 其中  $E$  为杨氏模量,  $\epsilon$  是外延层的应变,  $h$  是外延层的厚度。则对淀积相同厚度的Ge外延层, 由于对Si(001)面和Si(111)面,  $\epsilon h$  是相同的。根据Landau和Lifshitz的弹性理论, 立方晶系的弹性模量在沿立方晶胞边与沿立方晶胞的对角线方向分别取最小值与最大值。外延Ge层在Si(001)方向引入的应变能小于在Si(111)方向引入的应变能, 也就是说淀积同样厚的Ge层在Si(111)面易于成岛。对于此处所用的Si(001)6°斜切衬底相应于Si(1113)面, 介于Si(001)面与Si(111)面之间。它的弹性模量也介于Si(001)方向与Si(111)方向之间弹性模量值。因此, 对于外延同样厚的Ge膜, 在此衬底上引入的弹性应变能高于在Si(001)衬底上引入的弹性应变能, 也就是说在此衬底上外延Ge层成岛生长的临界厚度低于在Si(001)衬底

上成岛生长的临界厚度.

## 4 结论

在 Si(001) 6°斜切衬底上利用固相外延生长方法, 640°C 退火得到均匀性和热稳定性好的 Ge 量子点. 量子点的激活能为 1.9eV. 由于 Si(001) 6°斜切衬底上台阶结构的影响, Si 衬底表面上淀积吸附的 Ge 原子的扩散长度受到限制, 使量子点表现出较好的热稳定性. 实验观察到在 Si(001) 6°斜切衬底上固相外延生长 Ge 量子点成岛生长的临界厚度低于在 Si(001) 衬底成岛生长的临界厚度.

## 参考文献

- [ 1 ] Zhou Xingfei, Shi Bin, Jiang Weirong, et al. Influence of boron atom on growth of Ge quantum dots on Si(001). Chinese Journal of Semiconductors, 2000, 21: 765[ 周星飞, 施斌, 蒋伟荣, 等. 硼原子对 Si(100) 衬底上 Ge 量子点的影响. 半导体学报, 2000, 21: 765]
- [ 2 ] Ye Nianci, Liu Weisheng, Zuan Zhenying. Heterostructure of In(Ga)As quantum dots and quantum dots laser. Photo communication, 2001, 88: 24[ 叶念慈, 刘维升, 篆振瀛. 砷化铟(镓)量子点异质结构与量子点雷射. 光讯, 2001, 88: 24]
- [ 3 ] Zhu Jianhong, Brunner K, Abstreiter G. Appl Phys Lett, 1998, 73: 620
- [ 4 ] Zhu Jianhong, Brunner K, Abstreiter G. Appl Phys Lett, 1997, 72: 424
- [ 5 ] Suzumura I, Okada M, Muto A, et al. Thin Solid Films, 2000, 369: 116
- [ 6 ] Kamins T J, Ribeiro M G, Ohlberg D A A, et al. J Appl Phys, 1999, 85: 1159

## Growth of Ge Quantum Dots on Vicinal Si(001) Substrate by Solid Phase Epitaxy

Hu Dongzhi, Zhao Denglao, Jiang Weirong, Shi Bin, Gu Xiaoxiao, Zhang Xiangjiu and Jiang Zuimin

(National Key Laboratory for Surface Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China)

**Abstract:** Ge quantum dots growth on vicinal Si(001) substrate by solid phase epitaxy is described. The optimum temperature for solid phase epitaxy is found to be 640°C. It is also found that the critical thickness for Ge islanding growth is smaller on vicinal Si(001) substrate than that on Si(001) substrate. The activation energy of Ge quantum dots growth on vicinal Si(001) substrate is estimated to be 1.9eV, which is much larger than that 0.3eV on Si(111) substrate. The quantum dots growth on vicinal Si(001) substrate by solid phase epitaxy shows a high thermal stability.

**Key words:** quantum dots; Ge; solid phase epitaxy

**PACC:** 6855; 7320; 6820

**Article ID:** 0253-4177(2002)06-0604-05

Hu Dongzhi female, was born in 1971, lecture. She is working with the research on growth of SiGe materials and structure characterization.