

# 多层 Ge 量子点的生长及其光学特性\*

邓 宁 王吉林 黄文韬 陈培毅 李志坚

(清华大学微电子学研究所, 北京 100084)

**摘要:** 用超高真空化学气相沉积系统在 Si(100) 衬底上生长了多层 Ge 量子点。分别用 TEM 和 AFM 分析了埋层和最上层量子点的形貌和尺寸, 研究了量子点层数和 Si 隔离层厚度对上层 Ge 量子点的形状和尺寸分布的影响。观察到样品的低温 PL 谱线有明显蓝移(87meV), Ge 量子点的 PL 谱线的半高宽度(FWHM) 为 46meV, 说明采用 UHV/CVD 生长的多层量子点适合量子光电器件的应用。

**关键词:** 超高真空化学气相沉积; 多层锗量子点; PL 谱

**PACC:** 8110B

中图分类号: TN304

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2003)09-0951-04

多层量子点的生长及其特性是十分必要的。

本文用超高真空化学气相沉积系统(UHV/CVD)生长了多层 Ge 量子点, 用 AFM、TEM 对多层量子点的形貌、尺寸分布及应变情况进行了分析, 研究了量子点层数以及 Si 隔离层厚度对量子点尺寸分布的影响。对样品的低温 PL 谱测试表明量子点有明显的量子限制效应, Ge 量子点的 PL 谱线较体材料 Ge 蓝移 87meV。Ge 量子点谱线的半高宽度(FWHM) 为 46meV, 说明多层量子点的尺寸分布较窄, UHV/CVD 生长的多层量子点适合用于光电器件。

## 2 实验

采用我所自行研制的超高真空化学气相沉积系统 GSE-400 制备样品。该系统分为装片室和生长室, 生长室本底真空为  $6 \times 10^{-7}$  Pa。

衬底为 75mm(100) n 型 Si, 以 SiH<sub>4</sub>、GeH<sub>4</sub>(15%) 为气源进行生长, 生长过程中生长室的压力约为 10<sup>-2</sup> Pa。生长前, Si 片用 RCA 方法清洗, 然后在 1:10 的 HF:H<sub>2</sub>O 溶液中漂 30s, 去除自然氧化层, 同时使 Si 片表面氢钝化。

生长多层量子点之前, 先在 550℃ 下生长厚度为 40nm 的 Si 缓冲层。生长 Ge 量子点的工艺参数

## 1 引言

硅基光电子是光电子学发展的重要方向, 其前景无疑是十分诱人的。但是由于硅的体材料是间接带隙, 发光效率远低于直接带隙材料, 因此, 利用硅基低维材料(量子阱、量子线、量子点)提高发光效率成为一个很自然的思路。硅基量子点可能是提高硅基材料发光效率最有效的途径<sup>[1,2]</sup>: 一方面, 由于量子点的限制效应, 波函数发生扩展, 同时电子的态密度是完全分立的, 经典的能带结构已经不成立, 跃迁不再受选择定则的约束; 另一方面, 量子点对激子的束缚明显增强, 激子复合发光将大大增强。实验也已证实量子点的跃迁几率较量子阱有两个数量级以上的增强。此外, 由于量子点特殊的态密度分布, 可以制作性能更为优异的光电器件, 如量子点激光器具有更低的阈值电流密度、高功率增益和更高的特征温度, 可以用于正入射光的红外探测器等。

目前量子点材料存在的主要问题是: 量子点尺寸分布较宽、尺寸较大、密度小, 发光峰较宽、发光效率低, 对光电器件的应用来说是不利因素<sup>[3,4]</sup>。多层量子点(量子点超晶格)结构是基于量子点的光电器件的核心部分, 量子点材料的特性(尺寸分布、密度及应变情况等)直接影响到器件的性能, 因此, 研究

\* 国家自然科学基金(批准号: 69836020) 和教育部 985(批准号: Jz2001010) 资助项目

2002-10-23 收到, 2003-02-26 定稿

©2003 中国电子学会

如下: GeH<sub>4</sub> 流量为 5sccm, 生长时间为 15s, 衬底温度为 550 °C. 除特别说明外, Si 隔离层的厚度为 48nm, 每一层生长结束后为 15s 的生长中断. 为便于用 AFM 观察形貌, 最上面一层为裸露的 Ge 量子点.

量子点的形貌和尺寸用 DI Nanoscope III 原子力显微镜观测, 用透射电镜(TEM)观测多层量子点的断面形貌. 低温 PL 谱测试条件为: 光源为 LD 泵浦 波长 532nm 固体激光器, 探测器为液氮冷却的 InGaAs 探测器, 样品测试温度为 10K.

### 3 结果与讨论

量子点的自组织生长是由晶格失配导致应变驱动的, 量子点的层数和 Si 隔离层的厚度通过埋层量子点的应变场对量子点的形状和尺寸分布产生影响, 通过 AFM 分析了不同层数和不同 Si 隔离层厚度条件下上层 Ge 量子点的形状和尺寸分布, 结果分别如表 1 和表 2 所示.

表 1 不同层数时上层量子点的尺寸和形状分布

Table 1 Size and shape distributions of upper layer islands for different number of layers

量子点层数	宽度、高度/nm (圆形, 金字塔形)	密度/ $10^9 \text{ cm}^{-2}$ (圆形, 金字塔形)	总密度/ $10^9 \text{ cm}^{-2}$
1	55/4, 30/2	2.8, 6.5	9.3
3	69/11, 42/5	5.6, 3.1	8.7
5	66/11, 40/5	4.5, 1.4	5.9

表 2 不同隔离层厚度时上层量子点的尺寸和形状分布

Table 2 Size and shape distributions of upper layer islands for spacer layers with different thickness

Si spacer 厚度 / nm	宽度、高度/nm (圆形, 金字塔形)	密度/ $10^9 \text{ cm}^{-2}$ (圆形, 金字塔形)	总密度/ $10^9 \text{ cm}^{-2}$
32	66/11, 40/5	4.5, 1.4	5.9
48	80/12, 60/8	3.2, 6.2	9.4
80	80/12, 60/8	2.5, 7.5	10
120	80/12, 56/6	1.6, 8.4	10

首先, 从两个表中都可以看出 Ge 量子点的尺寸为双模尺寸分布(图 1 为典型双模尺寸分布 Ge 量子点 AFM 照片), 不同的尺寸对应于不同形状的量子点, 较大的尺寸对应圆形量子点, 较小的尺寸对应金字塔形量子点, 这与以往的研究结果相同<sup>[5, 6]</sup>. 从表 1 的结果分析, 随量子点层数的增加, 上层量子

点的总密度减小, 同时, 小尺寸金字塔形量子点所占比例也减小. 这是由于随着层数的增加, 在 Si 隔离层积累的应变增大, 导致上层量子点在较小的湿润层厚度时就形成三维岛来释放应变能(文献[7]中已经报导了二维湿润层随层数增大而减小的现象), 因此在相同生长条件下, 更多的金字塔形量子点向圆形转变, 使得小尺寸金字塔形量子点的比例减小. 量子点层数对量子点密度的影响在下面对多层量子点 TEM 分析时加以说明.

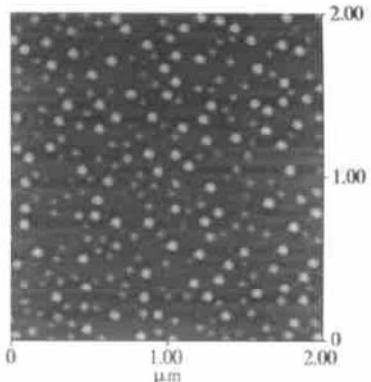


图 1 双模尺寸量子点的 AFM 照片

Fig. 1 AFM topograph of bimodal quantum dots

比较表 1 中单层和多层量子点的尺寸可以发现, 在多层结构中无论是金字塔形还是圆形量子点的尺寸(包括高度和水平尺寸)都明显增大, 这种尺寸的变化估计是由于多层结构中 Si 隔离层对量子点应变的影响造成的, 而这种影响的大小可能与 Si 隔离层和 Ge 量子点之间的互混有关. Si 隔离层如何通过对量子点应变的改变使尺寸增大的机制还在进一步地研究.

对于 Si 隔离层厚度不同的情况, 可以发现随隔离层厚度的增大, 上层量子点的总密度增大. 当隔离层厚度大于 48nm 时, 总密度和单层量子点的密度基本一致, 基本保持在约  $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . 在双模尺寸分布中, 随隔离层厚度的增加, 金字塔形量子点的比例逐渐增大, 从 24% 增大到 84%, 已经达到单层量子点中的水平. 在隔离层厚度较大时, Ge 岛上方 Si 隔离层远离埋层量子点部分发生弛豫, 晶格已经接近体 Si 的晶格, 埋层量子点形成的应变场基本被厚隔离层屏蔽, 因此, 上层量子点的密度和尺寸分布和在 Si 衬底上生长单层量子点的情况基本相同, 同时, 各层之间基本没有自对准的关系, 这也从另一方面证实了埋层量子点的应变场对上层量子点生长的

调制作作用。因此,要保证多层量子点的纵向自对准,隔离层的厚度必须小于某一临界值,在本文的生长条件下,隔离层厚度应不大于 48nm 才能得到纵向自对准的多层量子点。

图 2 是纵向耦合的 5 层量子点断面的 TEM 照片。从图中可以看出多层量子点存在纵向的自对准,是由于埋层量子点在上层产生的应变分布导致的<sup>[8]</sup>。但是实际的生长情况更为复杂,并不是简单的纵向对准,如第三层中对应于埋层的小尺寸量子点的位置并没有出现量子点(如图中箭头所示)。这种情况的出现是由埋层量子点 Si 隔离层上产生的应变场的分布决定的,埋层中小尺寸量子点在上层产生的应变极值受到两边大尺寸量子点的应变场影响,在正上方应变的绝对值和梯度都减小,使得该位置不能成为成核过程的能量择优位置,不能保证在该位置成核。因此,随着量子点层数的增加,上层量子点的总密度会减小。从另一方面看,由于埋层量子点应变场之间的耦合作用,使得量子点的间距和尺寸随着层数增加而趋于均匀,这与 Tersoff<sup>[9]</sup>的研究结果是一致的。

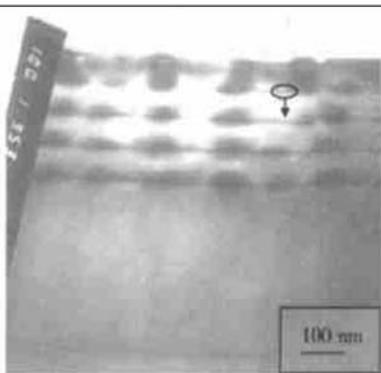
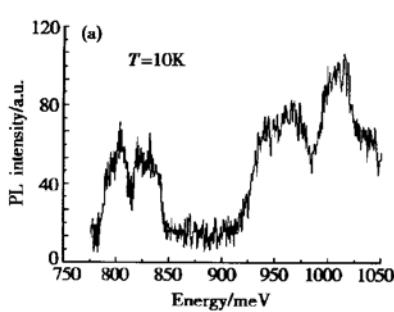


图 2 5 层量子点的断面 TEM 照片

Fig. 2 TEM image of 5 layers islands (cross section)

为了研究多层 Ge 量子点的光学特性以及量子点的量子限制效应,我们在 10K 温度下测量了 5 层量子点的 PL 谱(图 3(a)),平滑处理后的结果如图 3(b)所示。通过 Gaussian 拟合可以明显看出有 4 个峰位,在 0.79、0.825、0.95 和 1.01eV,分别对应于三维 Ge 量子点的纵光学声子辅助跃迁(TO)峰和非声子(NP)峰以及二维浸润层的 TO 峰和 NP 峰<sup>[10]</sup>。

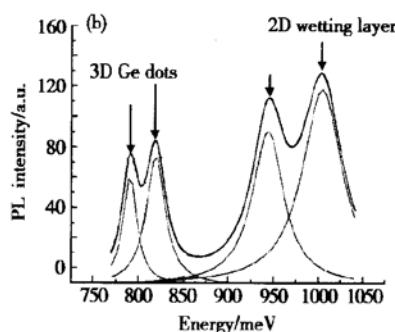


图 3 5 层量子点的低温 PL 谱 (a) 实验测量 PL 谱; (b) 平滑后 PL 谱的 Gaussian 拟合

Fig. 3 Low temperature PL spectra of 5 layers islands (a) Measured result; (b) Gaussian fit after smoothing

浸润层的发光来自于 Si 隔离层中电子和应变 Ge 阵中的空穴复合。TO 峰和 NP 峰相差 60meV,这一数值介于 Si 和 Ge 中的纵光学波声子的能量,是由于浸润层中 Si/Ge 互混造成的。0.825eV 处的发光峰指认为 Ge 量子点的 NP 峰,由压应变 Ge 岛中强限制的空穴和量子点上方张应变 Si 中的电子复合产生,Ge 量子点 PL 峰的半高宽仅为 46meV。该 NP 峰与体 Ge 材料的 0.738eV 相比,向高能端移动了 87meV,PL 谱线的蓝移是由量子点的限制效应以及 Si/Ge 互混和应变产生的结果。限制效应的存在是量子点结构在光电器件方面应用的基础。

#### 4 结论

本文采用 UHV/CVD 系统生长了多层 Ge 量子点。研究表明,随着量子点层数的增加,上层量子点的密度减小,金字塔形量子点的比例减小。必须控制 Si 隔离层厚度(本文情况下隔离层厚度应小于 48nm),才能得到纵向自对准的多层量子点结构,多层量子点结构有利于生成尺寸均匀的量子点。样品的低温 PL 谱分析表明了量子点对载流子的限制作用,Ge 量子点的发光峰有明显的蓝移(约 87meV)。

Ge 量子点发光峰的半高宽度只有 46meV, 适于量子光电器件的应用.

## 参考文献

- [ 1 ] Kovwenhoven L P, Costerkamp T H, Danoesastro M W S, et al. Excitation spectra of circular, few electron quantum dots. *Science*, 1997, 278: 1788
- [ 2 ] Hader J, Thomas P, Koch S W. Optoelectronics of semiconductor superlattices. *Progress in Quantum Electronics*, 1998, 22: 123
- [ 3 ] Eberl K, Schmidt O G, Duschl R, et al. Self assembling SiGe and SiGeC nanostructures for light emitters and tunneling diodes. *Thin Solid Films*, 2000, 369: 33
- [ 4 ] Usami N, Shiraki Y. Optical investigation of modified Stranski-Krastanov growth mode in the stacking of self assembled Ge islands. *Thin Solid Films*, 2000, 369: 108
- [ 5 ] Boucaud P, Le Thanh V, Yam V, et al. Aspects of Ge/Si self assembled quantum dots. *Mater Sci Eng B*, 2002, 89: 36
- [ 6 ] Goryll M, Vescan L L, Luth H. Bimodal distribution of Ge islands on Si(001) grown by LPCVD. *Mater Sci Eng B*, 2000, 69: 251
- [ 7 ] Schittenhelm P, Abstreiter G, Darhuber A, et al. Growth of self assembled homogeneous SiGe dots on Si(100). *Thin Solid Films*, 1997, 294: 291
- [ 8 ] Bauer G, Darhaber A A, Holy V. Self assembled germanium-dot multilayers embedded in silicon. *Cryst Res Technol*, 1999, 34: 197
- [ 9 ] Tersoff J. Self-organization in growth of quantum dot superlattices. *Phys Rev Lett*, 1996, 76(10): 1675
- [ 10 ] Eberl K, Schmidt O G, Kienzle O, et al. Preparation and optical properties of Ge and C-induced Ge quantum dots on Si. *Thin Solid Films*, 2000, 373: 164

## Growth of Stacked Ge Quantum Dots and Its Optical Characteristics<sup>\*</sup>

Deng Ning, Wang Jilin, Huang Wentao, Chen Peiyi and Li Zhijian

(Institute of Microelectronics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**Abstract:** Stacked Ge quantum dots are grown on Si(100) by ultra high vacuum chemical vapor deposition(UHV/CVD). The morphology and size distribution of embedded and upper Ge dots are studied by TEM and AFM respectively. The influences of number of layers and thickness of Si spacer on upper Ge dots are investigated as well. An apparent blue shift (87meV) is observed from the PL spectrum at 10K. FWHM of Ge dots NP peak is 46meV, which indicates the narrow size distribution of stacked Ge dots grown by UHV/CVD.

**Key words:** UHV/CVD; stacked Ge quantum dots; PL spectrum

**PACC:** 8110B

**Article ID:** 0253-4177(2003)09-0951-04

\* Project supported by National Natural Science Foundation of China(No. 69836020)

Received 23 October 2002, revised manuscript received 26 February 2003

©2003 The Chinese Institute of Electronics