

Si 中 Ge 量子点的光致发光*

胡冬枝 朱海军 蒋最敏 黄大鸣 张翔九 王 迅

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室 上海 200433)

摘要 生长温度 500℃下,在 Si(001)衬底上分子束外延自组织生长锗量子点. 700℃退火 20 分钟后观察到其光致发光. 原子力显微镜(AFM)和横截面试样透镜(XTEM)方法用于观察量子点的大小和密度. 利用喇曼光谱观察不同温度退火引起的 Ge 与 Si 之间的互扩散.

PACC: 6855, 6860, 7340L

1 引言

在 Si 衬底上自组织生长 Ge 岛或 Ge 量子点,并研究其电学和光学特性是目前很活跃的研究课题,因为该材料有望制作新型 Si 基光电器件. 目前有关 Ge 量子点的光致发光(PL)研究处于探索阶段,其发光机制也不象 GeSi 量子阱的发光机制清晰. 最近,Palange 等^[1]在 Si(001)面上外延生长 Ge 量子点结构,并观察到来自于 Ge 量子点的光致发光. Abstreiter 等^[2]研究了较高温度下在 Si(001)衬底上外延 Ge 岛或富 Ge 岛的生长条件和成岛密度,并观察到相应的光致发光. 本文采用分子束外延技术中的自组织生长方法,在 Si(001)衬底上生长 Ge 量子点. 为了减少 Ge 与 Si 之间的互扩散,选择较低的生长温度 500℃. 原子力显微镜(AFM)和横截面试样透射电镜(XTEM)方法用于观察 Ge 岛的大小和密度. 经过 700℃退火 20 分钟,观察到量子点的光致发光. 为了与量子点的发光比较,在相同温度下,制备了一块 Ge 量子阱样品. 利用喇曼光谱考察量子点和量子阱结构随退火温度的变化.

2 实验

样品生长在分子束外延仪 Riber-EVA32 上完成. 首先在温度 600℃下生长 50nm 厚的 Si 缓冲层,然后在 500℃下生长三层相同厚度的 Ge 层,样品 A 的 Ge 层厚度为 1nm,样品 B 的 Ge 层厚度为 0.7nm,Ge 层之间由 Si 间隔层隔开. 从衬底开始,第一 Ge 层与第二 Ge 层的间隔层为 30nm,第二 Ge 层与表面 Ge 层的间隔层为 80nm. Si 的生长速率为 0.1nm/s,Ge 的生长速率为 1.2×10^{-2} nm/s. 选择较低生长温度 500℃的目的是减小 Si 与 Ge 之间的互扩散. 对于样品 A,生长完每层 Ge 层后 RHEED 图样为 2×1 线状加大箭头,表明 1nm 厚的 Ge 层生长之后已形成岛结构(量子点). 对于样品 B,生长完每层 Ge 层后的 RHEED 图样为清晰的 2×1 线状,表明 0.7nm 厚的 Ge 层生长为二维模式生长. 将样品分别在 600℃, 700℃, 800℃下退火 20 分钟,测量其喇曼光谱和 PL 光谱. 喇曼光谱在 Jobin Yvon U1000

* 国家自然科学基金资助项目

胡冬枝 女,1971 年生,助教,从事 SiGe 材料的生长和结构表征
1997 年 4 月 18 日收到初稿,1997 年 7 月 8 日收到修改稿

Raman 谱仪上完成,采用近背散射配置,所用的激发光源为 Ar^+ 激光器的 488.0nm 线,功率为 200mW,散射信号由光电倍增管检测. PL 谱测量在 10K 或 16K 下进行,激发光源为 Ar^+ 激光器的 514.5nm 或 488.0nm 线,功率为 200mW,PL 信号由液氮冷却的 Ge 探测器检测. AFM 观察在原子力显微镜 NANOSCOPE II 完成. 横截面试样透射电镜观察在电子显微镜 JEOL JEM-2010 上完成,电子的加速电压为 200keV.

3 结果和讨论

图 1(见图版 I)为样品 A 的 AFM 和 XTEM 观察结果. 从图 1 可知,无论是埋在硅中的锗层还是表面的锗层均已成岛. 从 AFM 图中可以估算出岛的密度为 $1 \times 10^8/\text{cm}^2$. 600℃ 退火 20 分钟后其 PL 谱与没有退火的样品相同,只出现与 Si 衬底有关的发光峰. 图 2(a)(见图版 I)为样品 A 经 700℃ 退火 20 分钟的 PL 谱. 除了 Si 衬底的 TO 声子伴峰和一些较弱的与 Si 衬底有关的峰^[3],在能量为 900meV 处,出现一个宽度为 100meV 的峰. 我们知道在该样品中除了 Ge 量子点外,还存在开始二维生长时形成的 Ge 层(wetting layer),如图 1 所示. 这种结构的 PL 峰具有量子阱的发光特性,由于 wetting layer 很薄,其厚度应小于该温度生长成岛的临界厚度,量子限制效应使得这样的量子阱的发光峰位于 1000meV 左右^[4],不可能位于 900meV,由此可以认为该峰与内部和表面的 Ge 量子点有关. 室温下用双氧水腐蚀表面的 Ge 岛三分钟,该峰仍存在,但峰强变弱些,说明该峰既包含表面量子点的贡献又包含内部量子点的贡献.

关于这类峰的发光机制文献上有几种说法. 与低温生长时形成的缺陷或位错有关的发光峰,或为应变局域化激子发光即所谓的 L 带,或是量子点的激子发光. 如果该峰为生长时形成的缺陷的发光峰的话,从没有退火的样品中就应观察到^[5],在我们没有退火的样品中没有观察到这个峰. L 带倒是往往通过退火出现^[6],但当 Ge 的组分从 0.06 变到 0.53 时, L 带的位置从 990meV 变化到 620meV,900meV 峰位对应的 Ge 组分为 0.15,Ge 岛 Ge 组分如此小是说不通的,因为首先低温 500℃ 生长时,Si 与 Ge 的互扩散可以忽略不计,因此生长时 Si 与 Ge 之间的互扩散不可能使 Ge 量子点的 Ge 组分变得如此小. 其次,虽然 700℃ 退火可以引起 Si 与 Ge 之间混合,但从图 3(a)(见图版 I)所示的喇曼光谱来看,位于 300cm^{-1} 左右处与 Ge-Ge 键振动相对应的喇曼峰的强度与没退火的样品相比变化不大,800℃ 退火后该峰才明显变弱,表明存在较严重的互混,但此时 Ge 岛的组分也不会低到 0.15,因为一般来说 wetting layer 的 Ge 组分应比岛内的 Ge 组分小,如果 Ge 岛的 Ge 组分小到 0.15,来自 Ge 岛和 wetting layer 的喇曼散射信号中的 Ge-Ge 振动峰的强度不会大于 Ge-Si 振动峰的强度. 因此,700℃ 退火后 Ge 岛的 Ge 组分可能低到 0.15,900meV 处的宽峰不可能指定为与 Ge 岛相联系的 L 带. 该峰的另一种解释是来自 Ge 量子点的激子发光. 与 Ge 的能隙相比,该峰表现为很大的蓝移,根据理论计算^[7],约 10nm 大小的 Ge 量子点激子的量子约束能为 60meV,从 PL 谱得到的直径为 300nm,高为 50nm 的 Ge 量子点的激子的量子限制能为 60meV^[1],因此无论根据已有实验上数据还是理论计算,其激子的量子限制能不可能引起如此大的蓝移. 当然 Si 与 Ge 之间的互扩散可以造成该峰的蓝移,图 3(a)所示的喇曼光谱也表明,700℃ 退火后 Si 与 Ge 之间的互混是存在的,与 Ge-Ge 键振动相联系的峰强度略有变化,定量分析 Si 与 Ge 混合程度很难. 800℃ 退火后,该峰消失,也没有观察到与位错相联系的峰.

作为比较,在相同温度 500℃ 下生长了 Ge 量子阱结构样品. 未退火和在不同温度下退

火处理后样品 B 的喇曼光谱如图 3(b)(见图版 I)所示. 图 2(b)(见图版 I)为相应的 PL 谱. 没有退火的样品的 PL 谱和 600°C 退火后的 PL 谱相同, 700°C 退火处理后, 除了与 Si 衬底有关的发光峰外, 出现了典型的量子阱发光, 其中一个为量子阱的 NP 峰, 另一个为 TO 声子伴线, 800°C 退火后由于 Si 与 Ge 之间的混合, 发光峰发生蓝移. 从图 3(b)所示的喇曼光谱中与 Ge-Ge 振动相联系的喇曼峰的强度来看, 700°C 退火引起的 Si/Ge 之间的互混很小, 表现了比样品 A 量子点结构更好的热稳定性. 800°C 退火后, Si 与 Ge 之间的互混才明显, 与 Ge-Ge 振动对应的喇曼峰的强度明显变小. 虽然 700°C 退火在 Si 与 Ge 之间会引起一定的互混, 但是 Raman 光谱表明, 在样品 B(未成岛的)中, 700°C 退火引起的 Si 与 Ge 之间互混很小, 然而退火后就可以观察到 PL 峰, 所以样品 A 和样品 B 中 PL 峰的出现主要是由于 700°C 退火后非辐射缺陷态的减小, Si 与 Ge 之间的互混不是导致 PL 峰出现的原因.

4 结论

在低温 500°C 生长的 GeSi 量子阱或量子点样品, 经 700°C 退火 20 分钟后, 可观察到与量子阱或量子点相联系的激子复合发光峰. 对于不成岛样品, Raman 光谱表明 700°C 退火 20 分钟引起的 Si 与 Ge 之间的互混不明显, 对于成岛样品, 700°C 退火 20 分钟在 Si 与 Ge 之间引起一定的互混.

参 考 文 献

- [1] E. Palange, G. Capellini, L. Di Gaspare *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1996, **68**: 2982~2984.
- [2] G. Arstreite, P. Schittenhelm, C. Engel *et al.*, Semicond. Sci. Technol., 1996, **11**: 1521~1528.
- [3] G. Davies, Phys. Rep., 1989, **176**: 83~188.
- [4] H. Sunamura, N. Usami, Y. Shiraki *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1995, **66**: 3024~3026.
- [5] U. Menczgar, J. Brunner, E. Friess *et al.*, Thin Solid Films, 1992, **222**: 227~233.
- [6] J. P. Noel, N. L. Rowell, D. C. Houghton *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1990, **57**: 1037~1039.
- [7] T. Takagahara and K. Takeda, Phys. Rev. B, 1992, **46**: 15578~15581.

Photoluminescence of Ge Quantum Dots burried in Silicon

Hu Dongzhi, Zhu Haijun, Jiang Zuimin, Huang Daming, Zhang Xiangjiu and Wang Xun

(Surface Physics Laboratory, Fudan University, Shanghai 200433)

Received 18 April 1997, revised manuscript received 8 July 1997

Abstract Ge quantum dots were grown by self-organizing growth method on Si(001) substrate at a temperature of 500°C, its photoluminescence spectrum was observed after annealing at 700°C for 20 min. Atomic force microscopy and cross-sectional transmission electron microscopy were used to observe the size and density of the quantum dots. Raman spectra were measured for the samples annealed at different temperatures in order to observe the interdiffusion between Si and Ge atoms.

PACC: 6855, 6860, 7340L

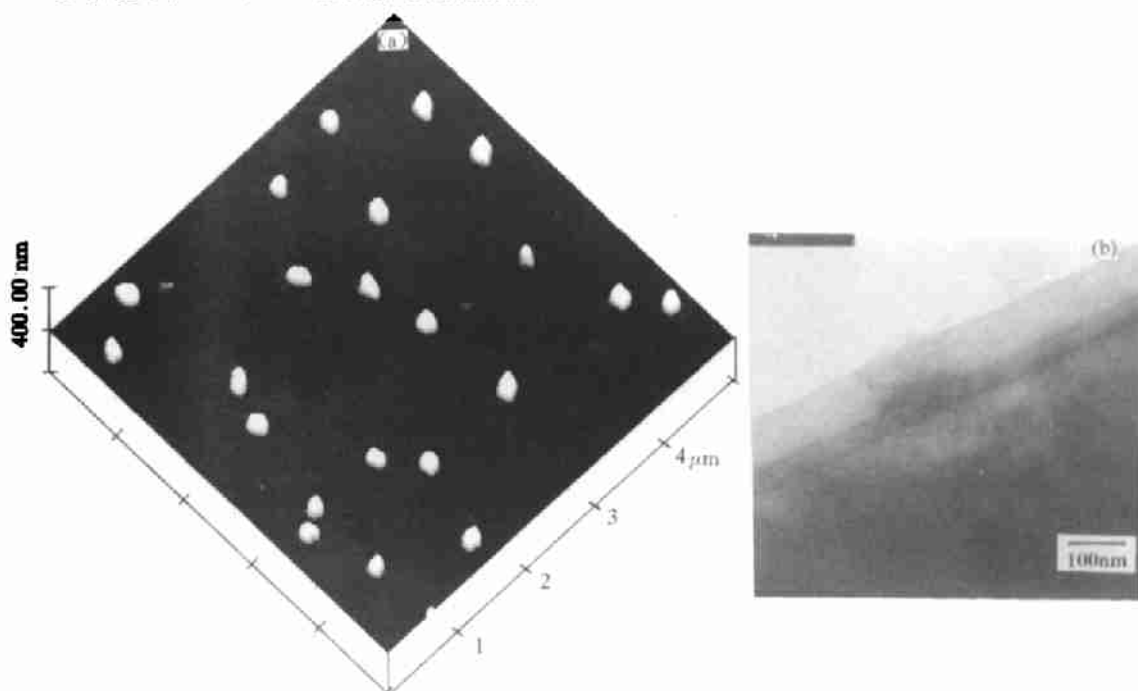


图 1 样品 A 的 AFM 图(a)和 XTEM 图(b)

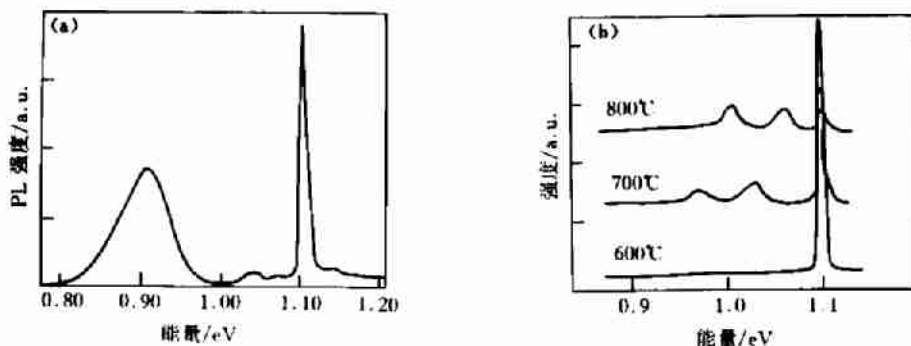


图 2 样品 A 经 700°C 退火 20 分钟后的 PL 光谱(a)和样品 B 在不同温度退火后的 PL 光谱(b)
测量时样品温度分别为 16K 和 10K.

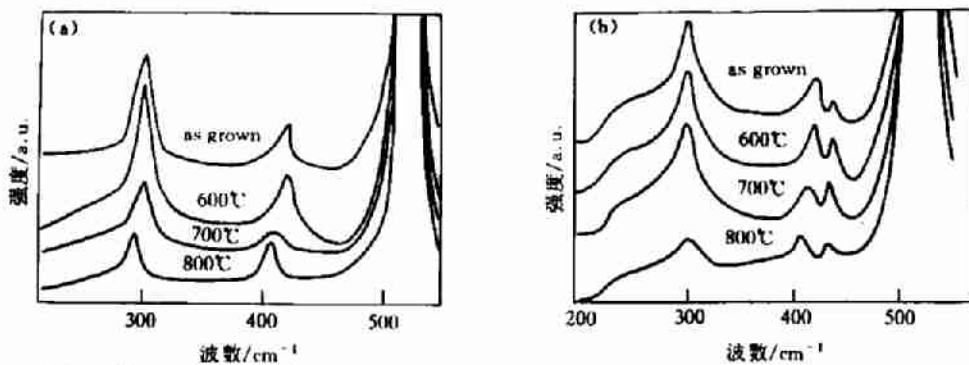


图 3 样品 A (a)和样品 B (b)退火前和在不同温度下退火 20 分钟后的 Raman 光谱