

硅量子点中电子的荷电动力学特征*

袁晓利 施毅 杨红官 卜惠明 吴军 赵波 张荣 郑有

(南京大学物理系, 固体微结构国家重点实验室, 南京 210093)

(2000 年 1 月 9 日收到, 2000 年 4 月 11 日收到修改稿)

利用频率依赖电容谱的测量, 对于 $\text{SiO}_2/\text{硅量子点}/\text{SiO}_2/\text{硅衬底}$ 隧穿电容中硅量子点的荷电特征进行了研究. 由于量子点的极小尺寸和良好的均匀性, 室温下在强反型区成功地观察到了与单电子隧穿相关的两个电容和电导共振峰, 它们分别对应于硅衬底导带上的电子与量子点中第一与第二个基态之间直接隧穿过程. 实验数据分析给出了量子点中的库仑荷电能, 并进行了讨论.

关键词: 量子点, 电容谱, 库仑荷电能, 直接隧穿

PACC: 7335C, 7360N, 7320D, 7340Q

1 前 言

硅量子点结构已引起了人们浓厚的研究兴趣, 无论在物理基础研究还是应用上都有非常重要的价值. 利用极小尺寸硅量子点显著的量子限制效应与库仑荷电效应, 正努力获得室温下可操作的单电子晶体管和存储器及高效的光电子器件^[1-6]. 对量子点物理性质的实验研究方法通常有电流-电压、光学测量等. 最近, 人们发展了利用电容谱方法研究隧穿电容结构中的 III-V 族量子点集群的量子限制与库仑荷电特征^[7-12]. 实验上, 通过调节栅压可以很好地控制电子一个一个地进入量子点并且占据最低的电子态. 测量中扫描栅压将衬底的准费米能级调节至量子点的电子能级附近, 使得衬底中的电子隧穿通过势垒进入量子点, 这样在一个小交流信号周期内可以实现量子点的充电与放电, 从而引起电容和电导的变化. 这种方法具有样品结构简单、灵敏度高等优点. 但目前尚未见到将此方法用于硅量子点系统的研究报道. 相比于 III-V 族量子点, 硅量子点的尺寸可以小至几个纳米, 这样即使在室温下, 量子限制效应与库仑荷电效应都会非常明显. 量子点中的电子能级主要由量子点尺寸决定, 故而对由大量数目量子点构成的系统进行测量, 尺寸的均匀性至关重要. 本文对由低压化学气相沉积系统自组装形成硅量子点, 特别在 750°C 下进行氧化, 利用量子点结

构的氧化的自限制效应使尺寸更加均匀^[13-15]. 这里首次报道采用电容测量方法研究硅量子点中电子的荷电特征. 所用样品的剖面结构、能带结构及交流电容测量的等效电路如图 1 所示.

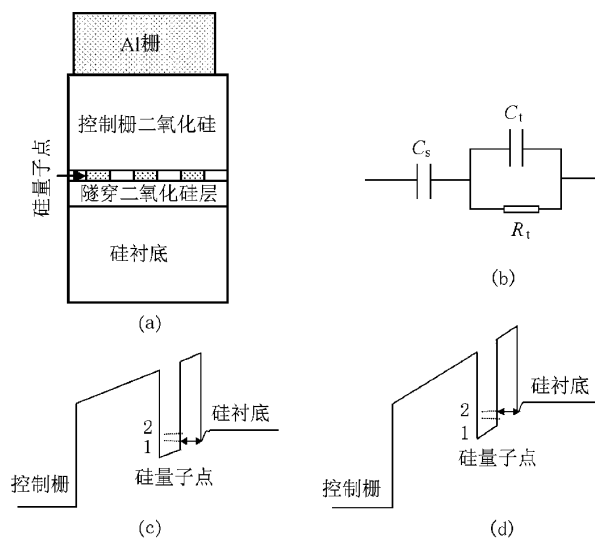


图 1 样品的剖面结构(a)、交流等效电路(b)和能带结构(c)(d)示意图

2 实 验

在测试样品的制备过程中, 首先在 p 型 (100) 硅衬底上 950°C 温度下热氧化生成约 3 nm 厚的直接

* 国家自然科学基金(批准号: 19774033, 69706004)和江苏省自然科学基金资助的课题.

隧穿二氧化硅层,然后在低压化学气相沉积系统中约 580℃ 温度下用自组装方法生长硅量子点.通过扫描电子显微镜观测(如图 2 所示),其平均密度为 $(2-4) \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$,直径约 8 nm.然后随即再沉积厚度约为 14 nm 的栅二氧化硅层,并且升温至 950℃ 进行退火以提高硅量子点和二氧化硅层的质量.这里为了使硅量子点的尺寸趋于均匀,我们特将样品置于氧气中 750℃ 下退火 100 min.在各种热处理过程后,通过掩模蒸铝在样品的两面形成电极,构成 $\text{SiO}_2/\text{硅量子点}/\text{SiO}_2/\text{硅衬底}$ 隧穿电容结构.采用 HP4194A 同时测量不同频率下电容随栅压变化($C-V$)和交流电导随栅压变化($G-V$)的特性.

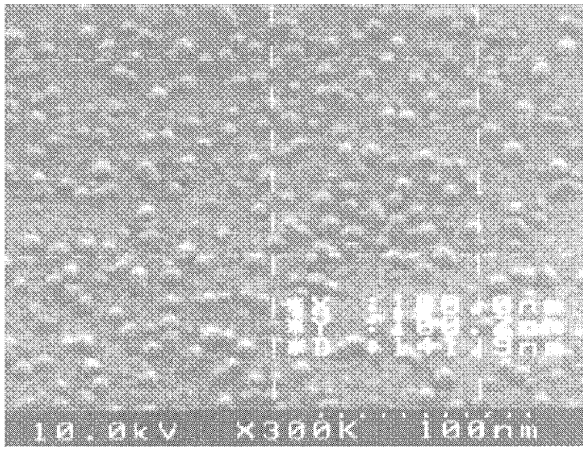


图 2 生长在二氧化硅层上硅量子点的扫描电子显微镜观察照片

3 结果和讨论

图 3 为偏置电压从 -3 V 向 3 V 的 $C-V$ 曲线,测量频率分别为 500, 1000 和 5000 Hz.从图中可以看出在 0 V 以下范围内电容表现出一般的积累区和耗尽区的特征.这里特别注意的是,在强反型区 $C-V$ 曲线出现两个电容峰,电容峰的幅度随着频率的升高而降低,但是峰的位置基本保持不变.峰 E_1 约在栅压 $V_{g1} = 0.44 \text{ V}$ 处,峰 E_2 约在栅压 $V_{g2} = 1.16 \text{ V}$ 处,两峰之间的间距约为 0.72 V .以下讨论说明这两个共振电容峰是由电子从硅衬底隧穿进入量子点的最低能级而导致.

电容谱测量是近年来所发展的研究量子点中电子能级、荷电性质的一种新方法.从图 1(c)与(d)的能带结构可以看到,当通过调节栅压使得硅衬底的导带接近硅量子点的电子能级时,电子可以在硅衬

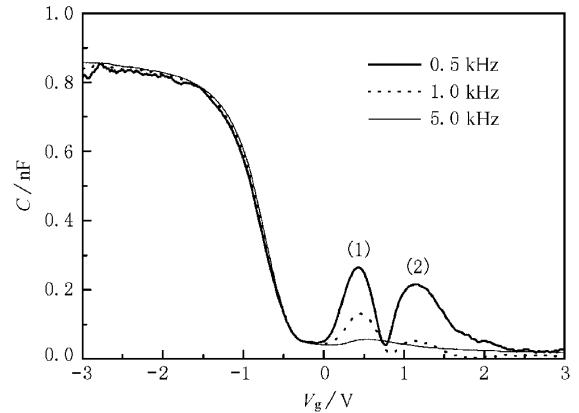


图 3 样品的频率依赖电容谱 $C-V$ 测量曲线

底与量子点之间发生直接隧穿.因而电容信号随着栅压的变化所出现的共振峰,反映了此时在栅压控制下有电子从衬底隧穿进入量子点.按照量子模型,最低和次低量子能级分别为二重与四重简并,通常分别称为 s 和 p 态.对于小尺寸的量子点而言,量子限制和库仑荷电效应共同起作用使电子能级发生明显的分裂.由于库仑荷电效应的影响,进入量子点的第一个和第二个电子虽然均占据 s 态,但它们电子能级之间存在着库仑荷电能量差.与约 20 nm 的 III-V 族量子点相比,这里硅量子点等效尺寸小得多(纳米晶粒不是严格的球形,而是类似于半球形,故设其等效尺寸约 4 nm),使得量子限制能量远大于库仑荷电能,因而更利于研究量子点中库仑荷电特征.利用常电容经典模型简单估算库仑荷电能,对于半径为 r 的球形量子点,它的自电容为 $C_{it} \sim 4\pi\epsilon\epsilon_0 r$,库仑荷电能为 $q^2/2C_{it}$.因此,对于等效尺寸为 4 nm 的硅量子点,其库仑荷电能约为 92 meV ,这几乎是室温下热激发能($\sim 26 \text{ meV}$)的 4 倍.

两个电容峰对应于两个电子顺序隧穿进入量子点的 s 态.量子点中的两个态之间的能量间距 ΔE 可以直接从两峰所对应的栅压 ΔV_g 得出^[7,8]:

$$\Delta E = \frac{t_b}{t_{\text{tot}}} e \Delta V_g, \quad (1)$$

式中 t_b 和 t_{tot} 分别是隧穿二氧化硅层和总的二氧化硅层的厚度,这里 $t_b = 3 \text{ nm}$, $t_{\text{tot}} \approx 17 \text{ nm}$ (见图 1).从实验测得的两峰距离 $\Delta V_g = 0.72 \text{ V}$ 可计算出两个电子能级之间能量间距 ΔE 为 127 meV .可见此值比简单常电容经典模型的理论估计值大.

实际上,量子点中的电子能级是相当复杂的,它不仅与量子点的尺寸、形状有关而且与含有的电子

数目有很大关系^[16,17]. 特别是, 对于嵌埋于二氧化硅层中硅的介电系数($\epsilon = 12$)与二氧化硅($\epsilon = 4$)不同, 故而导致量子点的静电能量除库仑相互作用外, 还受极化与自极化效应的影响^[16-19]. 量子点只有一个电子时, 该电子处于点中心处且极化能最小. 当两个电子占据时, 库仑和极化相互作用使电子相互排斥, 而自极化使电子远离边界相互靠近. 考虑到嵌埋于二氧化硅基中的硅量子点的库仑与极化作用, Babić^[18]研究指出, 对于 4 nm 的量子点按修正的经典方法计算出的第一和第二电子能级分别位于 30 和 150 meV, 间距为 120 meV.

基于图 1 给出的样品能带结构和交流等效电路, 对于涉及电子在量子点和衬底间的隧穿过程中电容和电导与频率的关系可用下列方程组表示^[10,20]:

$$\alpha(\omega) = \frac{C_0 C_s [1 + (\omega\tau)^2]}{C_0 + C_s (\omega\tau)^2},$$

$$\alpha(\omega) \gamma \omega = 2 \sqrt{C_0 C_s} \frac{(C_s - C_0) \omega\tau}{C_0 + C_s (\omega\tau)^2}, \quad (2)$$

式中, C_s 为控制栅层的电容, 并联的电容 C_t 和电阻 R_t 是对隧穿二氧化硅层的描述, C_0 为电容 C_s 和 C_t 的串联组合电容, 时间常数 $\tau = R_t C_t$. 从图 3 可看到, 随着频率的增高, 电容共振峰的幅度逐渐降低, 说明了电子的隧穿逐渐跟不上交流信号的变化. 电容共振峰的面积可反映出隧穿进入量子点的电子的数目, 在频率为 500 Hz 时, 二个峰的面积几乎相等. 当频率提高时, 峰 E_2 的面积比峰 E_1 的减小得快, 说明了第二个电子的隧穿时间常数比第一个电子的大. 进一步, 图 4 给出了测量的频率依赖 $G/\omega-V$ 曲线. 在衬底强反型区同样观察到了电导共振峰, 并且随着频率的增高, G/ω 的峰幅度降低. 两个电导共振峰分别位于 0.26 和 1.0 V, 恰好对应于电容共振峰半高的位置. 这里, 电容与电导共振峰的关系与方程(2)所描述的相一致.

在以前有关 InAs 量子点研究中, s 与 p 量子态电子能级的对应于电容共振峰已被观察到^[10,11]. 在本工作中, 硅量子点仅仅观察到 s 态. 这可能是尺寸的不均匀和极小尺寸下对应的量子能级很大的缘故而导致. 对称地, 在积累区空穴同样可从硅衬底隧穿注入量子点, 但由于很强的背景电容, 所以很难观察到所对应的电容共振峰.

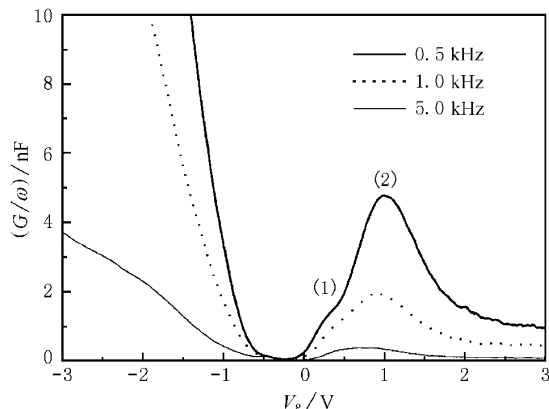


图 4 样品的频率依赖电导谱 $G/\omega-V$ 测量曲线

4 结 论

我们采用电容测量方法研究了硅量子点中电子的荷电特征. 利用 $\text{SiO}_2/\text{硅量子点}/\text{SiO}_2/\text{硅衬底}$ 隧穿电容, 在室温下观察到了电子在强反型区的硅衬底与量子点间的直接隧穿过程. 两个电容共振峰与电导共振峰分别对应于单电子隧穿进入量子点中第一与第二个基态, 同时峰的幅度随着测量频率的增高而逐渐降低. 从两个电容共振峰位置分析给出了目前硅量子点的库仑荷电能.

本文的部分工作是在日本东京大学生产技术研究所完成的, 在此特别对 T. Hiramoto 教授、H. Ishikuro 博士等深表感谢. $C-V$ 的测量工作得到南京大学固体微结构国家重点实验室王业宁院士、严峰博士、陈小兵博士的大力支持和帮助, 在此表示衷心的感谢.

- [1] K. K. Likharev, *Proc. IEEE*, **87** (1999), 606, and reference therein.
- [2] H. S. P. Wong, D. J. Frank, P. M. Solomon, C. H. J. Wann, J. J. Welser, *Proc. IEEE*, **87** (1999), 537, and reference therein.
- [3] H. Ishikuro, T. Hiramoto, *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997), 3691.
- [4] Y. Shi, K. Saito, H. Ishikuro, T. Hiramoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **B38** (1999), 2454.
- [5] Y. Kanemitsu, *Phys. Rep.*, **263** (1995), 1, and reference therein.
- [6] J. J. Si et al., *Acta Physica Sinica* **48** (1999), 1745 (in Chinese) [司俊杰等, *物理学报*, **48** (1999), 1745].
- [7] R. C. Ashoori, H. L. Stormer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, K. W. Baldwin, K. W. West, *Phys. Rev. Lett.*, **71** (1993), 613.
- [8] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus, P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.*, **73** (1994), 2252.

- [9] G. Medeiros-Ribeiro , J. M. Garcia , P. M. Petroft , *Phys. Rev.* **B56** (1997) , 3609.
- [10] R. J. Warburton , B. T. Miller , C. S. Durr , C. Bodefeld , K. Karrai , J. P. Kotthaus , G. Medeios-Riberiro P. M. Petroff , *Phys. Rev.* **B58** (1998) , 16221.
- [11] H. Pettersson , R. J. Warburton , J. P. Kotthaus , N. Carlsson , W. Seifert , M. E. Pistol , L. Samuelson , *Phys. Rev.* **B60** (1999) , R11289.
- [12] M. Liu *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **47** (1998) , 699 (in Chinese) 刘明等 *物理学报* **47** (1998) , 699] .
- [13] D. Kao , J. P. McVittie , W. D. Nix , K. C. Saraswat , *IEEE Trans. Electron Dev.* , **35** (1988) , 25.
- [14] H. I. Liu , D. K. Biegelsen , F. A. Ponce , N. M. Johnson , R. F. W. Pease , *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994) , 1383.
- [15] J. L. Liu , Y. Shi , F. Wang , R. Zhang , P. Han , G. S. Lin , S. M. Zhu , Y. D. Zheng , *Appl. Phys. Lett.* **69** (1996) , 1761.
- [16] G. W. Bryant , *Phys. Rev. Lett.* , **59** (1987) , 1140.
- [17] M. Lannoo , C. Delerue , G. Allan , *Phys. Rev. Lett.* , **74** (1995) , 3415.
- [18] D. Babic , R. Tsu , R. F. Greene , *Phys. Rev.* **B45** (1992) , 14150.
- [19] J. M. Ferreyra , C. R. Proetto , *Phys. Rev.* **B60** , (1999) , 10672.
- [20] E. H. Nicollian , J. R. Brews , *MOS (Metal Oxide Semiconductor) Physics and Technology* (John Wiley & Sons , New York , 1982).

CHARGING DYNAMICS OF SI-QUANTUM DOTS IN TUNNEL CAPACITOR^{*}

YUAN XIAO-LI SHI YI YANG HONG-GUAN BU HUI-MING WU JUN ZHAO BO ZHANG RONG ZHENG YOU-DOU

(Department of Physics & National Laboratory of Solid State Microstructures , Nanjing University , Nanjing 210093 , China)

(Received 9 January 2000 ; revised manuscript received 11 April 2000)

ABSTRACT

Using frequency-dependent capacitance spectroscopy , we investigate the charging dynamics of silicon quantum dots embedded in oxide matrix through a SiO₂/Si-quantum dots/SiO₂/Si-substrate tunnel capacitor. Two resonance peaks both for capacitance and conductance in the inversion region are observed at room temperature , being attributed to the direct tunneling between the conductance band of Si-substrate and the one-and two-electron ground-state level of the Si quantum dot. The Coulomb charging energy of the dots is extracted from the experimental results.

Keywords : Quantum dot , Capacitance-voltage measurement , Coulomb charging energy , Direct tunneling

PACC : 7335C , 7360N , 7320D , 7340Q

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19774033 , 69706004) and by the Natural Science Foundation of Jiangsu Province , China.