

在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面自组织生长 二维 Ge 团簇超晶格^{*}

闫 隆 张永平 彭毅萍 庞世谨 高鸿钧

(中国科学院物理研究所和凝聚态物理中心北京真空物理开放实验室, 北京 100080)

(2001 年 10 月 8 日收到)

利用超高真空扫描隧道显微镜研究了室温条件下亚单层 Ge 在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面上的自组织生长. 通过控制 Ge 的沉积量, 在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面上自组织生长成一种具有六重对称性的二维 Ge 团簇超晶格. 构成超晶格的 Ge 团簇均位于 (7×7) 亚单胞的位置上, 而且它们的形状和大小基本保持一致. 文中对这种自组织结构的形成机理进行了讨论.

关键词: 扫描隧道显微镜 (STM), $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面, 二维 Ge 团簇超晶格

PACC: 0779, 6855, 7320D

1. 引 言

半导体异质外延生长使半导体器件结构设计和制作产生了新的飞跃, 因而受到广泛重视^[1-3]. Ge 和 Ge/Si 在 Si 表面的外延生长就是其中的一个研究焦点. 近来, 人们力图通过自组织生长在 SiGe 体系中获得有序图案, 这是因为“有序”是未来纳米尺度光电子集成器件对材料的前提要求. 在 Ge/Si 的异质外延生长中, 应力岛的自组织生长被广泛地用来构建高密度的纳米尺度的有序结构^[4-10]. 然而, 精确地控制这些应力岛的密度、均匀度和有序度依然具有相当的难度.

提高有序度的另外一种途径是设计具有周期性结构的模板^[11, 12]. 沉积的原子能够在模板上周期性分布的某些位置上聚集形成纳米尺度的团簇, 并进而构成有序二维阵列. 与利用周期性应力场自组织生长量子点的方法相比较, 这种方法在实验上更简洁, 而且控制量子点结构的一致性也更容易. $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面是一种很好的天然模板, 它是 Si(111) 表面中最稳定的重构^[13]. 此外, 外来原子由于受到 (7×7) 结构中悬挂键、二聚体链和堆错的影响, 具有选择性吸附的特点^[14]. 比如, 很多金属都倾向于吸附在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面上的堆错位置

上^[15-18]. 最近, Vitali 等人^[19]报道了 T1 原子在室温下选择性地聚集在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 的堆错亚单胞上, 从而形成一个非常有序的二维 T1 纳米团簇阵列.

半导体元素如 Si 和 Ge 虽然也能选择性地吸附在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面的亚单胞位置^[20, 21], 但形成的团簇在形状和尺寸上一般都不太规则. 本文报道了一个新的结果: 通过控制 Ge 的沉积量的方法能很好地控制 Ge 团簇的形状和尺寸, 最终在 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 表面获得具有六重对称性的二维 Ge 团簇超晶格.

2. 实 验

实验中样品的清洁、沉积以及 STM 成像过程均是在一台 Omicron 的超高真空扫描隧道显微镜 (UHV-STM) 系统中进行的, 系统的本底压强小于 1×10^{-8} Pa. 所用的样品是 p 型 $\text{Si}(111)$ 抛光片, 其电阻率为 $1-2 \Omega \text{cm}$, 厚度为 0.54mm. 首先将样品在 600°C 加热去气 12h, 然后迅速升温到 1200°C , 再缓慢降到室温, 降温速率小于 1°C/s . 经过几次升降温处理后, 可以得到大面积的 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 重构表面. 沉积过程是用纯度为 99.9999% 的 Ge 片直流加热到 800°C 使其蒸发到处理好的 Si 片上, 基底 Si 片

* 国家自然科学基金(批准号: 6977001)资助的课题.

保持在室温,沉积速率大约为 $0.005\text{ML}/\text{min}$. 之后,在室温下对沉积了 Ge 的 Si 样品进行 STM 成像.

3. 结果与讨论

图 1(a) 是室温下 0.4ML Ge 沉积在 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面上得到的空态 STM 图像. 从图中可以看出,沉积的 Ge 原子凝结成团簇,而且团簇的形状和大小都较为相近,它们均匀地分布在这个表面上形成二维超晶格结构. 这种结构的快速傅里叶变换(图 1(a)的插图)展示出六重对称性图案,表明 Ge 团簇在二维方向的堆积方式具有六重对称性. 图 1(b)的高分辨 STM 图像显示,这些 Ge 团簇的尺寸和一个亚单胞的尺寸相接近,相邻的两个团簇之间的界线能清晰地观察到,而且一般是六个团簇围成一圈形成一个洞. 这些界线(图中白线所示)和洞的位置与 (7×7) 重构中的二聚体链和角洞的位置有着很好的对应. Köhler 等人^[21]已经观察到 Ge 团簇均位于 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面的亚单胞上,而二聚体链和角洞的位置不会被覆盖. 另外,大量的实验显示,室温下在 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面上沉积几个单层的 Ge 并不会使 (7×7) 重构发生任何变化^[22-24]. 所以,我们相信这些 Ge 团簇都位于 (7×7) 亚单胞的位置上. 由于在堆错和未堆错亚单胞上的 Ge 团簇没有什么区别,因此它们形成的二维超晶格结构自然具有六重对称性.

为了理解这种有序图案形成的机制,我们降低 Ge 的覆盖度以获取 Ge 生长过程中的信息. 图 2(a) 是室温下 0.3ML Ge 沉积在 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面上得到的空态 STM 图像. 从图中可以看出,箭头所指区域上的团簇和图 1 中的 Ge 团簇相似,表明有序 Ge 团簇已经开始生长成形. 但大部分区域中的团簇仍显得比较小,高度较低,而且它们的形状也不太规则. 当 Ge 的沉积量增大至 0.35ML 时,如图 2(b) 所示,具有规则有序的团簇区域扩大并且彼此连成一片. 应当指出,所有这些团簇的尺寸都不会超过一个亚单胞的大小. 由此可见,虽然沉积量的增加会促使团簇的逐渐长大,但 Ge 团簇增大到一定程度就会停止生长.

如何理解 Ge 在 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 的这种生长现象呢? 在初期吸附阶段,由于 (7×7) 基底上吸附原子和静止原子的悬挂键有很强的吸附作用,到达表面的 Ge 原子的迁移率很低,从而增加了成核概率,

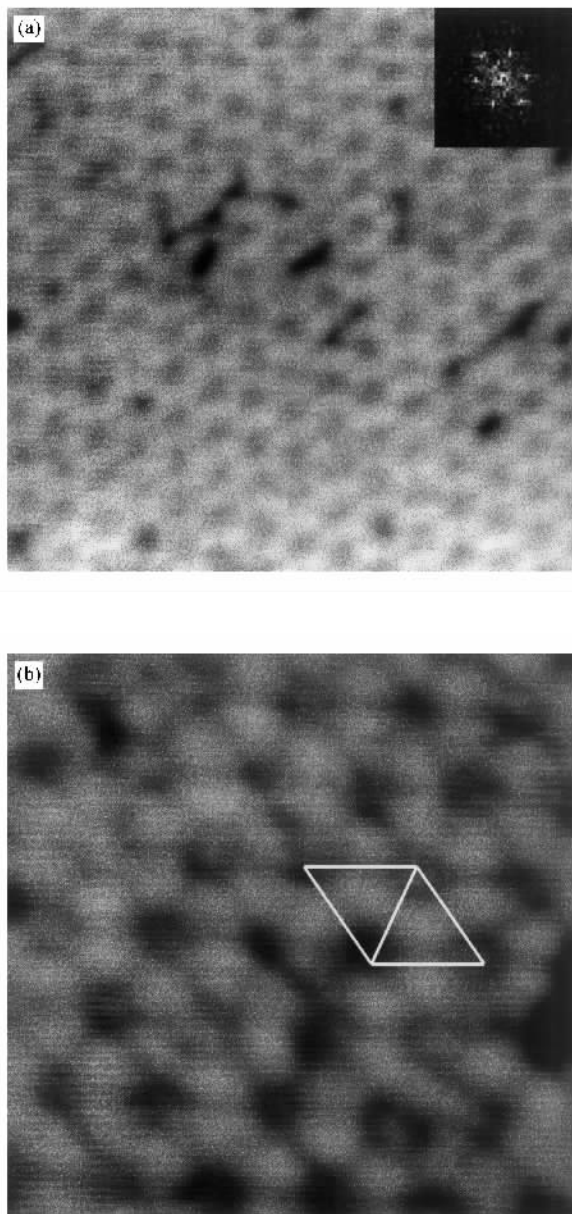


图 1 室温下 $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面上沉积 0.4ML Ge 后得到的 STM 恒流像 (a) 扫描面积为 $40\text{nm}\times 40\text{nm}$, 样品偏压和隧道电流分别为 $+1.76\text{V}$ 和 0.44nA , 右上角的插图是这个 STM 图像的快速傅里叶变换 (b) 高分辨 STM 图像, 扫描面积为 $12\text{nm}\times 12\text{nm}$, 样品偏压和隧道电流分别为 $+1.80\text{V}$ 和 0.43nA . 图中白线标出一个 (7×7) 单胞, 在每个亚单胞中有一个 Ge 团

导致形成的 Ge 团簇能均匀地覆盖在 (7×7) 基底上. 而当团簇足够大以至于饱和了亚单胞中所有的悬挂键时, 这些被饱和了的悬挂键对后来的原子的吸附能力就会变得很小, 而且沉积形成的团簇本身对外来原子的吸附能力也比较小. 所以, 外来原子落在这些大的团簇上时, 其迁移率就会增加, 相应地就会倾向于移动到小团簇的位置上. 这样, 正如 STM 图像

所显示的那样,当 Ge 团簇长大到一定尺寸时,它们的继续生长就会受到抑制.因此我们认为 (7×7) 基底上的悬挂键对 Ge 团簇的形成和生长起着决定性的作用.

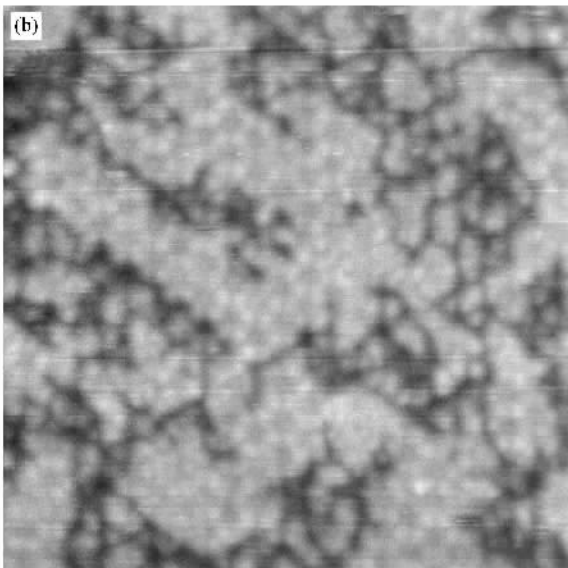
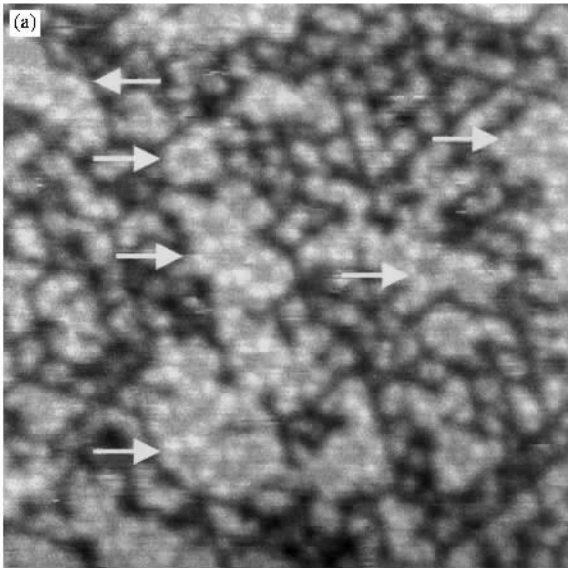


图2 室温下 $S(111)-(7 \times 7)$ 表面上沉积 (a) 0.3ML Ge 和 (b) 0.35ML Ge 的 STM 恒流像,扫描面积均为 $35\text{nm} \times 35\text{nm}$,样品偏压和隧道电流分别为 (a) +1.70V 和 0.48nA (b) +1.60V 和 0.48nA

下面考虑更高 Ge 覆盖度的情况.室温下 0.5ML Ge 沉积在 $S(111)-(7 \times 7)$ 表面后,如图 3 所示,在被 Ge 覆盖的 $S(111)-(7 \times 7)$ 表面上出现了一些密堆积的 Ge 岛,而孤立的 Ge 团簇则很难观察到.这表明在 (7×7) 基底上铺满了 Ge 后,再继续沉积的 Ge 原子受到 (7×7) 重构的影响将会非常小,相应地,这些

Ge 原子的迁移率就大大提高.另外,从图 3 中还可以观察到,没有被 Ge 岛覆盖的区域,依然能清晰地观察到六重对称性超晶格结构,构成此结构的 Ge 团簇的形貌也没有发生任何改变.这再次说明,继续沉积的 Ge 原子依然不会使 Ge 团簇再长大.

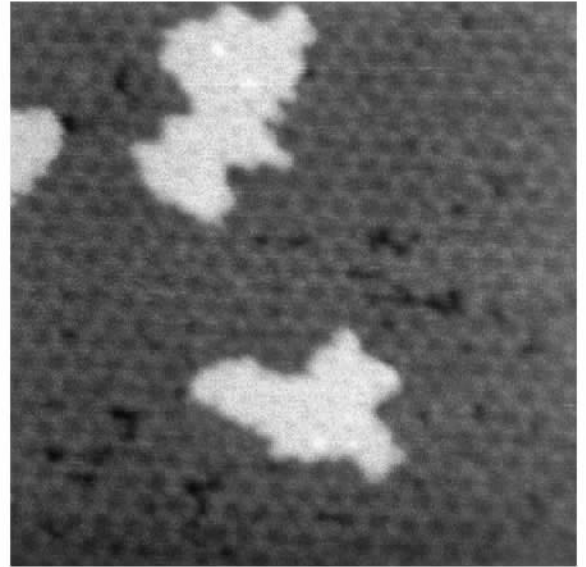


图3 在 $S(111)-(7 \times 7)$ 表面上沉积 0.5ML Ge 后得到的 STM 恒流像,样品偏压和隧道电流分别为 +1.86V 和 0.43nA,扫描面积是 $55\text{nm} \times 55\text{nm}$

$S(111)-(7 \times 7)$ 表面的某些电子性质也可以用 STM 技术进行研究.实验中我们发现,对于 $S(111)-(7 \times 7)$ 表面上的超晶格结构,在低的正偏压以及负偏压下扫描得到的 STM 图像的起伏很小,不能获得清晰的图像.这种现象可以通过测量 Ge 团簇的扫描隧道谱(STS)来进行分析.图 4 是 Ge 团簇的 STS 图谱,它显示在费米面附近明显地存在一个禁带,所以在偏压值处在费米面附近的能级值内时,电子在

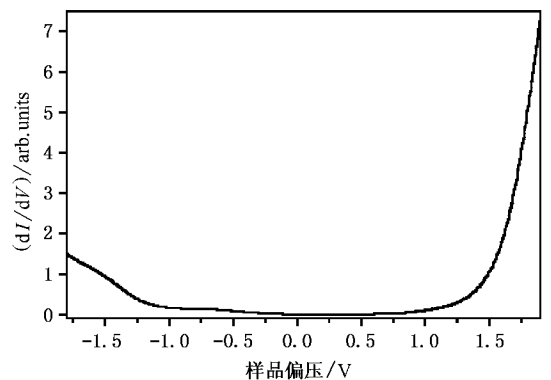


图4 超晶格结构中 Ge 团簇的扫描隧道谱

吸附团簇和针尖之间隧穿的概率就很小,相应的很难获得清晰的 STM 图像;另外,在 -1.8eV 附近的占据态密度远远低于 $+1.8\text{eV}$ 的空态密度,这导致电子从基底上的团簇隧穿到针尖的概率远小于从针尖隧穿到团簇的概率.因此,仅在高的正偏压下才易于获得高分辨的 STM 图像.由于 Ge 团簇的这种较差的导电性,我们推测这些团簇可能是无定形的.

4. 结 论

在室温下 $\text{Si}(111)(7 \times 7)$ 重构基底能很好地控

制 Ge 团簇的成核和生长.在 0.4ML 覆盖度下,具有一致性的 Ge 团簇选择性地吸附在 (7×7) 的亚单胞上,从而形成一个具有六重对称性的二维超晶格结构.进一步地,若以覆盖在 (7×7) 表面上的 Ge 团簇超晶格结构作为新的基底,继续沉积的 Ge 原子将在其上形成密堆积的 Ge 岛.

- [1] Cheng Y D , Liu X Q , Lu W , Shi G L , Shen C X , Zhao Q X 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1911 (in Chinese) [陈益栋、刘兴权、陆卫、史国量、沈学础、Zhao Q X 1999 物理学报 **48** 1911]
- [2] Liu H F , Chen H , Li Z Q , Wan L , Huang Q and Zhou J M 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1541 (in Chinese) [刘洪飞、陈弘、李志强、万里、黄绮、周均铭 2000 物理学报 **49** 1541]
- [3] He X C , Shen H S , Zhang Z M , Wan Y Z and Shen T 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 532 (in Chinese) [何贤昶、沈荷生、张志明、万永中、沈 挺 2000 物理学报 **49** 532]
- [4] Voigtländer B and Zinner A 1993 *Appl. Phys. Lett.* **63** 3055
- [5] Moison J M *et al* 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 196
- [6] Tersoff J , Teichert C and Lagally M G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1675
- [7] Shiryaev S Yu , Jensen F , Hansen J L , Petersen J W and Larsen A Nylandsted 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 503
- [8] Xie Y H , Samavedam S B , Bulsara M , Langdo T A and Fitzgerald E A 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 3567
- [9] Zhu J H , Brunner K and Abstreiter G 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 620
- [10] Ross F M , Tromp R M and Reuter M C 1999 *Science* **286** 1931
- [11] Mui D S L , Leonard D , Coldren I A and Petroff P M 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 1620
- [12] Kamins T I and Williams R Stanley 1998 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1201
- [13] Takayanagi K , Tanishiro Y , Takahashi M and Takahashi S 1985 *J. Vac. Sci. Technol. A* **3** 1502
- [14] Yan L , Zhang Y P , Peng Y P , Pang S J and Gao H J 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2132 (in Chinese) [闫 隆、张永平、彭毅萍、庞世谨、高鸿钧 2001 物理学报 **50** 2132]
- [15] Tosch St and Neddermeyer H 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 349
- [16] Lin X F , Chizhov I , Mai H A , Willis R F 1996 *Surf. Sci.* **366** 51
- [17] Tang D , Elsayed-Ali H E , Wendelken J , Xu J , Tosch St and Neddermeyer H 1995 *Phys. Rev. B* **52** 1481
- [18] Watanabe A , Naitoh M and Nishigaki S 1998 *Jap. J. Appl. Phys.* **37** 3778
- [19] Vitali L , Ramsey M G and Netzer F P 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 316
- [20] Köhler U , Demuth J E and Hamers R J 1989 *J. Vac. Sci. Technol. A* **7** 2860
- [21] Köhler U , Jusko O , Pietsch G , Müller B and Henzler M 1991 *Surf. Sci.* **321** 248
- [22] Gossman H J , Feldman L C and Gibson W M 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 294
- [23] Gossman H J , Feldman L C and Gibson W M 1985 *Surf. Sci.* **155** 413
- [24] Hibino H and Ogino T 1994 *Appl. Surf. Sci.* **82/83** 374

Self-organized growth of sub-monolayer Ge on $S(111)-(7 \times 7)^*$

Yan Long Zhang Yong-Ping Peng Yi-Ping Pang Shi-Jin Gao Hong-Jun

(*Beijing Laboratory of Vacuum Physics , Institute of Physics & Center for Condensed Matter Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China*)

(Received 8 October 2001)

Abstract

Self-organized growth of sub-monolayer Ge on $S(111)-(7 \times 7)$ surface has been investigated using ultra-high vacuum scanning tunneling microscopy (UHV-STM). By controlling Ge deposition quantity , an ordered six-fold pattern of Ge clusters is formed on $S(111)-(7 \times 7)$ surface at room temperature. The Ge clusters sit preferentially on the halves of the (7×7) unit cells , and have similar shape and uniform size. The formation mechanism of the self-organized structure is discussed.

Keywords : scanning tunneling microscopy (STM) , $S(111)-(7 \times 7)$ surface , Ge cluster , two dimensional superlattice

PACC : 0779 , 6855 , 7320D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No.6977001).