

通过纳米硅中量子点的共振隧穿^{*}

刘 明 王子欧 何宇亮 江兴流

(北京航空航天大学应用物理系, 北京 100083)

(1997 年 9 月 22 日收到)

用纳米硅(nc-Si:H)薄膜制成了隧道二极管,并在其 I-V 曲线上发现了不连续的量子化台阶.二极管的 I-V 曲线可分成二部分:(1)0—7 V,电流随外加电压增大而增大;(2)7—9 V,电流随外加电压急剧增大并出现三个量子化台阶.量子化台阶的出现直接与纳米硅中的晶粒有关,根据 nc-Si:H 的独特结构,对载流子的传导通道进行了讨论;用通过 nc-Si:H 中量子点的共振隧穿对 I-V 曲线进行了初步解释.

PACC: 7340G; 2520F; 2530C

1 引 言

自从 Tsu 和 Esaki 等^[1,2]提出并观察到量子阱结构的共振隧穿现象以来,低维系统的研究范围大大扩展.大多数共振隧穿结构都由晶格匹配较好的 III-V 族化合物半导体材料制成.1989 年 Fortunato^[3]报道了他们在 $\text{Si}_x\text{C}_{1-x}\text{:H}/\text{nc-Si}/\text{Si}_x\text{C}_{1-x}\text{:H}$ 结构中观察到共振隧穿现象,此后, Tsu^[4,5]报道了他们用高温晶化和氧化的方法制成了在无序 SiO_2 网络中嵌着纳米数量级晶粒的薄膜,用这种薄膜制成了量子点结构二极管,并在室温条件下观察到了共振隧穿现象.这些工作不仅丰富了低维半导体的研究内容,而且为硅材料在量子效应器件方面的应用开辟了新的途径.

使用等离子体增强化学汽相沉积(PECVD)法制备的纳米硅薄膜(nc-Si:H)是一种新型人工功能材料.它是由大量的具有纳米数量级的细微晶粒(晶粒尺寸为 3—6 nm)及大量界面(界面层厚度为 2—3 个原子层)构成.nc-Si:H 薄膜与 Tsu 用于制作隧道二极管的薄膜具有相似的结构^[5],我们用 nc-Si:H 薄膜制成了隧道二极管并在 77 K 时观察到共振隧穿现象.本文将对实验及其结果进行报道.

2 实验与结果

纳米硅薄膜的隧道二极管截面示意图如图 1 示.衬底材料为 n 型(100)单晶硅,掺杂浓度为 $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.用干法氧化生长 100 nm 左右的 SiO_2 层,然后在 SiO_2 薄膜上光刻 $30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$ 的窗口.将已刻出图形的 Si 衬底放入 PECVD 生长室,淀积一层 20 nm 左

^{*} 国家自然科学基金资助的课题.

右的 nc-Si:H 薄膜, 用热蒸发的方法在 nc-Si:H 上蒸一层厚度约 $1\ \mu\text{m}$ 的 Al 作上电极, 在样品背面蒸 Al 作为下电极. 二极管的 I - V 曲线结果示于图 2. 由图 2 知, 二极管的 I - V 曲线可分成两部分: 1) 0 — $7\ \text{V}$, 电流随电压单调增加; 2) 7 — $9\ \text{V}$, 电流随电压迅速增大并且呈现出三个量子化台阶. 图 2 的 I - V 曲线测量分别在 $100, 77, 45\ \text{K}$. 外加电压慢速从高到低或从低到高扫描, 上述结果的重复性很好.

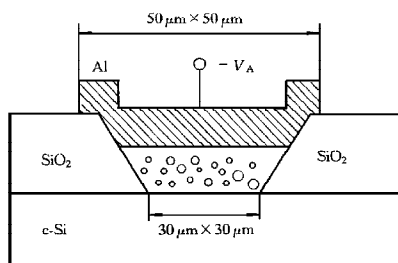


图 1 nc-Si:H 二极管的结构示意图

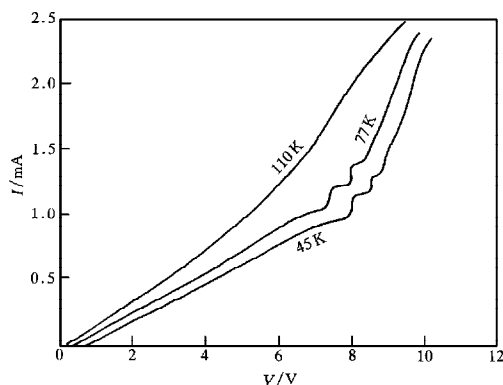


图 2 不同温度下二极管的 I - V 曲线

实验中发现二极管的 I - V 曲线中的量子化台阶直接与 nc-Si:H 中的晶粒有关. 保持图 1 的结构不变, 只是将其中 nc-Si:H 层改成非晶硅 (a-Si:H) 层, 测得其 I - V 曲线与普通二极管的 I - V 曲线相同, 量子化台阶消失.

量子点 (QD)^[6] 是近年来提出的一个新的物理概念. 当一个电子在三维方向上限制在比其德布罗意波长更小的尺寸下, 电子的能级变成离散的量子化能级. 一般地光刻产生的 QD 其晶粒尺寸在 $100\ \text{nm}$ ^[7,8] 左右, 但 QD 的晶粒大小相同, 分布均匀 [本文称这种量子点为 artificial QD (AQD)]. 已知一个电子的库仑能 $E_C = e^2/2C$ (C 为 QD 的电容), 对一尺寸在 50 — $100\ \text{nm}$ 的 Si 量子点阵列, 其 $C = 10^{-16}$ — $10^{-17}\ \text{F}$, E_C 只有 2 — $3\ \text{meV}$, 对于这样的 QD 阵列, I - V 曲线上的量子化台阶只能在极低的温度, 如 0.7 — $1.7\ \text{K}$ ^[9] 出现. 理论计算表明: 当晶粒尺寸小于 $3\ \text{nm}$ 时, C 值将降到 $10^{-19}\ \text{F}$, 则 E_C 可达到 $55\ \text{meV}$, 大于室温下电子的动能 ($kT = 26\ \text{meV}$). 此时, 共振隧穿可以出现在室温下. 但对我们的 nc-Si:H 样品, 当平均晶粒尺寸从 3 变到 $5\ \text{nm}$, 并没发现晶粒尺寸与出现共振隧穿现象时的温度的关系. nc-Si:H 中的晶粒尺寸由 Raman 谱图估算, 它只能给出一个平均晶粒尺寸. 下面的分析表明: nc-Si:H 中只有部分晶粒对电流有贡献, 而这一部分晶粒的尺寸难以精确确定. 这可能就是我们的样品出现共振隧穿的温度对晶粒尺寸不敏感的原因.

3 讨 论

3.1 制备二极管的 nc-Si:H 的微结构

前面的研究表明, nc-Si:H 中的晶粒可看作量子点^[10]. [这种量子点直接在薄膜沉积

过程中形成不需要进行光刻,因此称作 **natural QD (NQD)**]. **nc-Si:H** 中的晶粒与 **QD** 相似之处是电子被限制在小尺寸范围.但它们也存在根本的不同之处,如组分及 **QD** 的尺寸分布.在 **AQD** 中,**QD** 是同一种物质,点的尺寸均匀分布.而 **nc-Si:H** 由两种不同组元构成,纳米尺寸的 **Si** 构成非均匀分布的晶粒,界面区则由 **a-Si:H** 构成.红外谱图表明,**nc-Si:H** 中富含氢,其光学带隙 E_g 可达到 $2.1 \text{ eV}^{[11]}$,而 **Si** 的带隙为 1.12 eV .因此,被周围非晶层限制的 **NQD** 的能带将分裂成离散的能级 E_1, E_2 等,如图 6(a)所示.

在讨论共振隧穿机制之前,我们有必要先弄清楚载流子在这两相结构(晶态与非晶态)材料中是如何传导的.显然,非晶硅的低电导率 [$10^{-10} (\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1})$] 使载流子难以在其中传导.我们过去对 **nc-Si:H** 薄膜的研究中^[12] 发现它们具有很高的电导率 ($10^{-3} \sim 10^{-1} \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$),这源于它们具有高的晶态比(50%左右).在这种晶态比下,相邻晶粒之间的非晶层只有 2—6 个原子层厚,载流子很容易实现异质结量子点的隧穿传导^[10].但 **nc-Si:H** 中的晶粒是随机分布的,且晶粒大小在 3—5 nm 之间变化.一般地,对含有晶粒尺寸分布的样品,其 $I-V$ 曲线中的量子化台阶将被平滑(smear)掉.

所幸的是,我们用来制备共振隧穿二极管的样品中的晶粒并非完全随机分布的.图 3 给出了一个样品的扫描隧道显微(**STM**)照片.从图 3 中知,在 **nc-Si:H** 中存在一些近似均匀分布的晶粒群.这些晶粒群组成了团簇(cluster).在团簇内,晶粒的尺寸近似相同,且分布也较均匀.团簇之外是 **a-Si:H** 层,其中无规分布着少量小尺寸晶粒.为了进一步证明在 **nc-Si:H** 中存在排列较规则的晶粒.同一样品的双晶 X 射线衍射图示于图 4.从图 4 可以看出,在主衍射峰两侧出现了一系列较对称的卫星衍射峰,类似于 **AQD**(其 X 射线衍射图示于图 4 插图中)^[13].这进一步表明 **nc-Si:H** 中的晶粒分布并非完全无规的.其中存在一些团簇,其内部的晶粒排列较规则,晶粒大小也较一致.

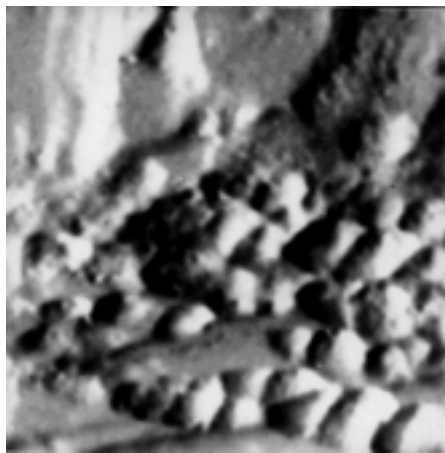


图 3 **nc-Si:H** 的 **STM** 照片,扫描范围 $40.9 \text{ nm} \times 45.5 \text{ nm}$

基于以上分析,我们可以认为对共振隧穿电流有贡献的载流子并非来自 **nc-Si:H** 中全部晶粒,而是来自团簇中的晶粒.可以假定这些晶粒具有相同的晶粒尺寸,当外加电压使金属费密能级与 **NQD** 的量子化能级拉平时,共振隧穿现象发生.

因此当 **nc-Si:H** 制成图 1 所示结构的二极管时,在外加偏压作用下,只有薄膜中电阻低的地方形成通路.在这些地方,**NQD** 几乎均匀分布,晶粒之间的非晶层很薄,如图 5 所示.此时,测试样品实际上是一个多通道并联的量子点隧穿结构.

基于以上分析,用共振隧穿可以解释图 2 观察到的量子化台阶.

3.2 通过 **NQD** 的共振隧穿

图 6(a)表示在一个左右接触点 **Q** 和 **D** 上的偏压 V_a 变化时,一个量子点及势垒的能

带变化. 图中 E_1, E_2 为量子点中前二个量子化能级. 当偏压 V_a 增加, 使金属电极的费密能级 E_F 与势阱中的能级 E_1, E_2 拉平时, 出现共振隧穿, 电流呈现图 6(b)所示的台阶. 进一步考虑到衬底中如图 7(a)中在 D 与 T 之间耗尽层的影响, 则由于耗尽层电场的作用,

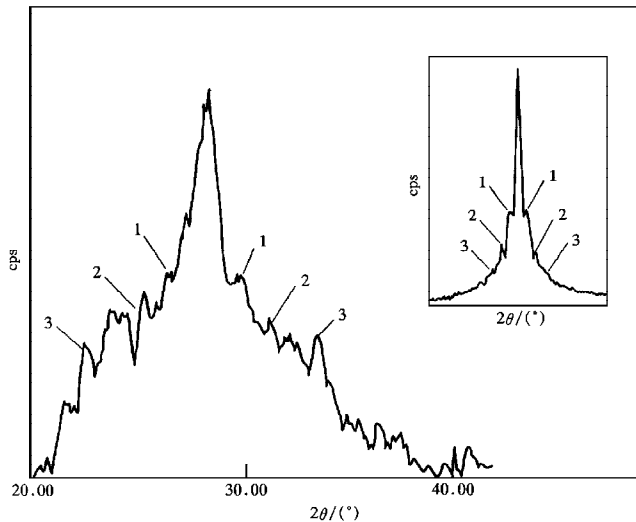


图 4 nc-Si:H 的双晶 X 射线衍射谱, 插图为 AQD 的衍射谱 (引自文献[13])

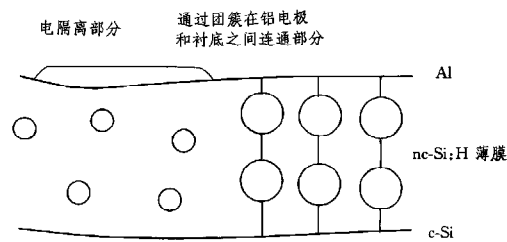
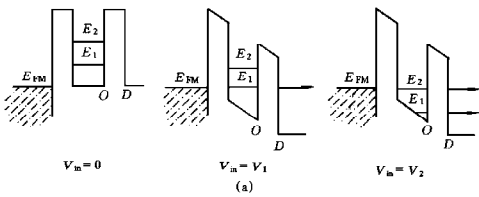


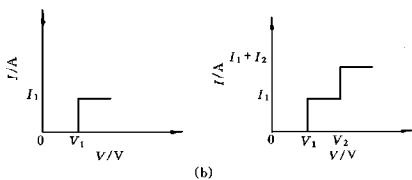
图 5 当 Al 电极与衬底之间施加偏压时, NQD 形成通道示意图



(a) 隧道二极管在外加偏压时的能带变化图

电子在 D 与 T 之间被加速, 结果表现为图 7(b)中所示的在电压 $V_a - V_s$ 大于 V_1 而小于 V_2 范围内电流单调增加, V_s 为在耗尽层 D 与 T 之间的压降. 由于 V_s 的存在, 当 $V_a - V_s$ 大于 V_1 时, 载流子在施加于衬底上的电压 V_s 的作用下被加速, 因而电流-电压的关系如图 7(b)所示.

图 2 中在第一个台阶出现前存在流过测试样品的电流表明, 在第一个量子化能



(b) 对应(a)结构中电流-电压关系

图 6

级之下存在对隧穿有贡献的能级, 电流可以通过这些能级隧穿通过晶粒. 晶粒表面存在 Si—H 键而有定域态存在, 这些定域态与晶粒中的量子态的区别是定域范围不同. 如: 一

个尺寸为 3 nm 的晶粒其基态波函数分布于 3 nm 的范围,而定域态的波函数只存在于小于 1 nm 的范围.所以晶粒中的量子态与金属 Al 中能态的耦合强于定域态与 Al 中能态的耦合.当 Al 中费密能级与定域态能级拉平时,隧穿通过势垒层的电流小于它与量子态能级拉平时的电流.这些定域态能级的存在使得当施加在双势垒层中的电压小于使金属费密能级与第一量子态能级拉平的电压值时,有电流隧穿通过这些态而流过双势垒层.

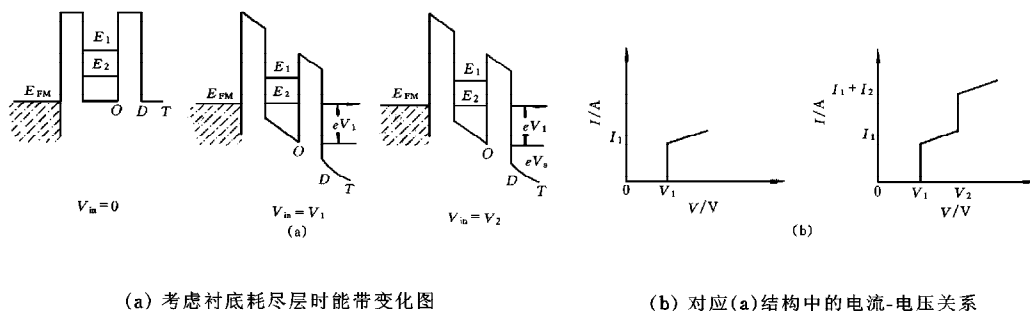


图 7

4 结 论

用 nc-Si:H 制成了隧道二极管.并在其 I - V 曲线中观察到量子化台阶, I - V 曲线可分成两部分.(1) $0-7\text{ V}$, 电流随电压单调增加;(2) $7-9\text{ V}$, 由于共振隧穿、电流急剧增大,表现在 I - V 曲线上出现量子化台阶.对这一现象进行了定性解释.国内外对纳米硅的研究多集中在结构和光学特性方面.电输运特性的研究极少.我们在这方面只是做了初步工作,精确的理论分析和实验正在进行中.

- [1] R. Tsu and L. Esaki, *Appl. Phys. Lett.*, **22**(1973), 562.
- [2] L. L. Chang, L. Esaki and R. Tsu, *Appl. Phys. Lett.*, **24**(1974), 593.
- [3] E. Fortunato, R. Martins, I. Ferrira, M. Santos, A. Macrarico and L. Gui maraes, *J. Non-cryst. Solids*, **115**(1989), 120.
- [4] Darorih Babic, Raphaol Tsu and Richard F. Greene, *Phys. Rev.*, **B45**(1992), 14150.
- [5] Edward H Nicollian and Raphaol Tsu, *J. Appl. Phys.*, **74**(1993), 4020.
- [6] L. Bangai and S. W. Koch, *Semiconductor Quantum Dots* (World Scientific, 1993).
- [7] U. Merkt, *Adv. Solid. Stat. Phys.*, **30**(1990), 77.
- [8] M. Komma, H. Cartins, F. A. Sarotto and S. Veprek, *Philos. Mag.*, **B55**(1998), 377.
- [9] T. A. Fulton, J. Dolan, *Phys. Rev. Lett.*, **59**(1989), 109.
- [10] G. Y. He, R. F. O. Wnnel, Y. L. He and M. B. Yu, *J. Appl. Phys.*, **70**(1995), 745.
- [11] X. N. Liu, X. W. Wu, X. M. Bao and Y. L. He, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994), 220.
- [12] He Yuliang, Liu Xiangna, Wang Zhichao, Cheng Guangxi, Wang Luchun and Yu Shidong, *Science in China*, **A9**(1992), 995(in Chinese).
- [13] Mai Zhenghong, *Wuli*, **25**(1996), 303(in Chinese).

RESONANT TUNNELING THROUGH NANO-SIZE QUANTUM DOT EMBEDDED IN AMORPHOUS TISSUES^{*}

LIU MING WANG ZI-OU HE YU-LIANG JIANG XING-LIU

(*Department of Applied Physics, Beijing University of Aeronautics and Astronautics, Beijing 100083*)

(Received 22 September 1997)

ABSTRACT

The diode consisting of nano-silicon quantum dots embedded in an amorphous silicon matrix was fabricated and the discontinuous staircases on its I - V curves were observed. There were two distinct regimes on I - V curves of diode: (i) the sequential tunneling regime, where current increased monotonously with increasing negative bias; (ii) the resonant tunneling regime, where the current increased dramatically with increasing negative bias, and three quantum staircases appeared. It was found that the steps was related to the grains of the deposited film. The qualitative explanation of this physical phenomenon was proposed in terms of the material structural characteristics.

PACC: 7340G; 2520F; 2530C

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China.