

# (113) 面硅衬底上自组织生长的 GeSi 量子点及其光荧光

司俊杰 杨沁清 滕 达 王红杰 余金中 王启明

(中国科学院半导体研究所, 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100083)

郭丽伟 周均铭

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(1998 年 8 月 10 日收到; 1999 年 1 月 2 日收到修改稿)

用透射电子显微镜观察了 Si(113) 衬底上由固态源分子束外延生长的自组织量子点的形貌, 测量了其原生及退火后低温下的光荧光光谱. 对所得结果进行了分析.

PACC: 7340L; 7855; 6170A

## 1 引 言

近年来, 硅基材料发光一直是光电子集成研究中的重要领域, 人们期望通过这项研究实现硅单片光电子集成, 达到以现有成熟的硅大规模集成电路工艺制造廉价光电子集成器件的目的<sup>[1]</sup>. 硅材料固有的间接带光复合跃迁特性使得它发光效率很低. 提高发光效率的方法主要集中在 Er-Si、多孔 Si、应变 GeSi 量子阱及纳米硅等方面. 其中利用 GeSi 量子点是重点研究方向之一, 它可改变 GeSi 材料的能带结构, 打破间接跃迁需要声子辅助, 即 K 空间需动量守恒的限制, 显著提高载流子的光复合效率.

在构造 GeSi 量子点的方法中, 除了人为控制刻蚀制作的方法外, 利用应变材料的二维 Strongsky-Krastanov (SK) 型生长, 自组织形成量子点是最近薄膜异质材料生长的热点<sup>[2]</sup>. 它避免了刻蚀方法构造量子点所造成的表面损伤<sup>[3]</sup>, 因而降低了载流子非辐射复合概率, 并且用该方法可以得到密度较高、无位错的应变量子点结构. 1992 年 Notzel 等<sup>[4]</sup>报道了 GaAs 在 AlGaAs 衬底上自组织生长量子线的现象, 其后又有大量关于 InGaAs, InAs 在 GaAs 衬底上自组织生长的研究结果<sup>[5,6]</sup>. Ge 和 Si 上的应变短周期超晶格 (SLs) 的生长也在 1987 年就有了报道<sup>[7]</sup>, 但利用 SK 型生长制作 GeSi 量子点则在近年开展得较多<sup>[8,9]</sup>.

对于不同取向的 Si 衬底, Si(113) 无疑是值得关注的一种. 首先, 在高指数面衬底中它具有低的表面能, 适于做分子束外延 (MBE) 衬底<sup>[10]</sup>. 其次, Si(113) 面较低指数面具有更多的台阶和台面, 表面悬挂键的数目更多, 所以在它上面的外延情况将不同于普通低指数面的生长情况<sup>[11]</sup>. 第三, 对理想 (113) 面上的悬挂键而言, 其单悬挂键密度和三悬挂键密度相同, 这有可能引起生长过程中大的各向异性<sup>[12]</sup>. GaAs(113)A 和 (113)B 面上的自

组织生长量子点已有不少报道<sup>[13,14]</sup>,发现较(100)面的生长结果具有更大的密度和均匀性.但我们迄今尚未见到在 Si 高指数面上生长 GeSi 自组织量子点的报道.我们期望在 Si(113)衬底上也得到清晰、均匀的自组织生长 GeSi 量子点,为此进行了相应的实验研究,以下是我们的初步结果.

## 2 实 验

样品由 VG-80 MBE 系统生长.样品结构为 200 nm Si 缓冲层/ $3 \times (2.5 \text{ nm Ge}_{0.4}\text{Si}_{0.6}/10 \text{ nm Si})$ /Si 10 nm 盖帽层,生长温度为 800 °C. Si 衬底采用 N 型 Si(113),  $\phi 50 \text{ mm}$ , 电阻率  $10 \Omega \cdot \text{cm}$ .我们用 JEM 200CX 型透射电子显微镜(TEM)对样品表面和截面进行了观察和分析.光荧光(PL)谱是在 10 K 下测量得到的,使用了 SPEX 1404 双光栅单色仪,信号经锁相放大后,由致冷 Ge 探测器接收.

## 3 结果与分析

图 1 和图 2 分别是样品表面和截面的 TEM 照片.

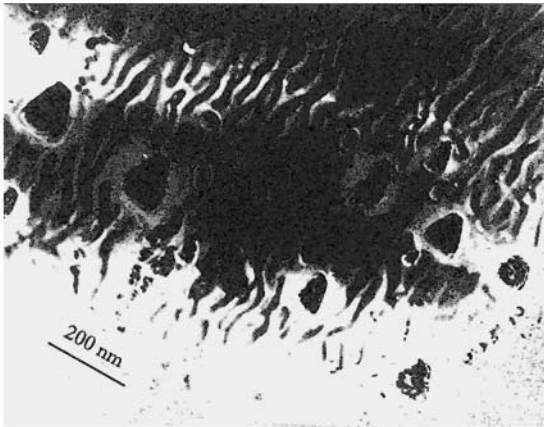


图 1 自组织 GeSi 量子点的 TEM 俯视图

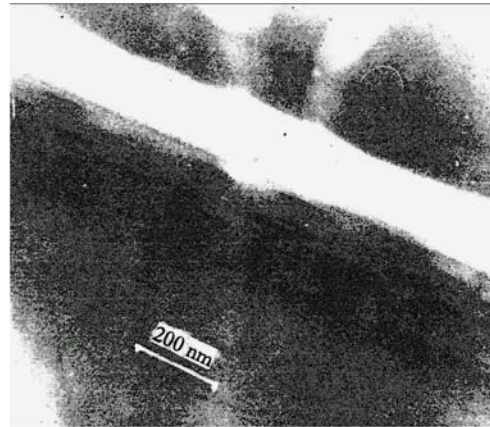


图 2 自组织 GeSi 量子点的 TEM 截面图

样品的形貌具有以下的特点:

首先,有明显的 GeSi 自组织量子点生成,它们呈截角金字塔形状.说明尽管有不同形状量子点的报道,如金字塔形、柱形、片形、新月形等,但 Si(113)平面的 GeSi 量子点仍以金字塔形为主.这与 Notzel 等<sup>[15]</sup>报道 GaAs(113)A 平面上所得 InGaAs 量子点的形状不同.为了排除 TEM 图像衬度是由组分变化所引起,我们对样品还做了原子力显微(AFM)测量,形貌图像如图 3 所示,结果也证实了自组织量子点的类金字塔凸起结构.由于 AFM 测量中样品是带覆盖层的,实际量子点尺寸应以 TEM 测量为准.

其次,表面有明显的台阶束(step bunching)和自组织量子点共存现象,这不同于 GaAs(113)A 或(113)B 上的生长研究结果<sup>[15,16]</sup>,后者报道的或者是量子点的生成,或者

是台阶束的生成. 而我们的观察则是两者共存. 这应该和 Si(113) 衬底的表面微结构紧密相关. 可以看出 GeSi 自组织量子点的排列有明显的择优取向, 它们同台阶束的排列方向相垂直. GeSi 量子点沿  $[\bar{1}10]$  方向排列, 台阶束沿  $[3\bar{3}2]$  方向. 我们认为 GeSi 量子点优先产生于应变导致的应力释放最大处. 用 Knall 等<sup>[16]</sup> 的 (113) 表面构形模型可解释此结果, (113) 表面的每个单元由二聚体排(dimer row) 和钉扎原子构成, 二聚体排方向沿  $[\bar{1}10]$  方向. 由于二聚体排末端具有大的黏附系数, 外延 GeSi 层首先沿  $[\bar{1}10]$  方向排列. 在高应力作用下, 钉扎原子处的 GeSi 层较二聚体排处的 GeSi 层应变更大, 所以更易于放出能量, 结果导致沿  $[3\bar{3}2]$  方向的台阶束.

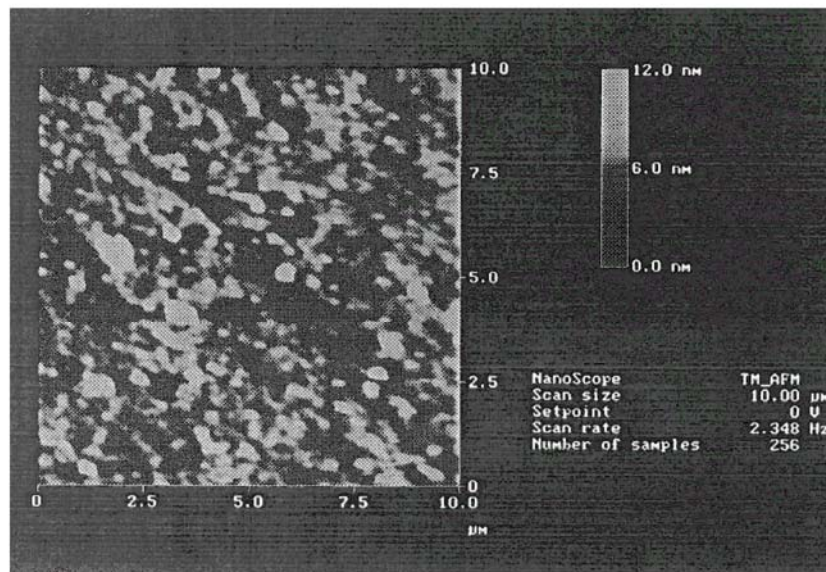


图3 自组织 GeSi 量子点的 AFM 形貌图

第三, GeSi 自组织量子点的尺寸分布是非均匀分布. 图 4 给出由 TEM 照片上统计所得量子点底部尺寸分布情况. 可以看出 GeSi 量子点的大小有一可几分布, 它与生长条件有关, 分布上的极值预示着一个稳定状态的存在. 由图 4 知, 最可几分布在 40 nm 处. 由截面的 TEM 测量得出纵向尺寸不超过 12.5 nm. 尺寸上的起伏可能与生长的层数较少有关, 随着周期数的增加, 量子点的尺寸将会趋于均匀. 台阶束的宽度分布与自组织量子点尺寸大小的分布不同, 大

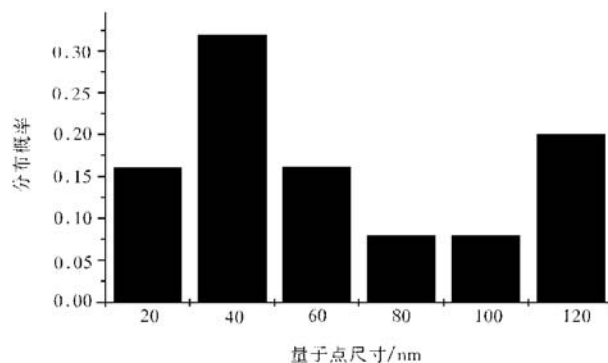


图4 自组织 GeSi 量子点尺寸分布直方图

体在 40–60 nm 的范围内, 相对量子点尺寸分布而言较为均匀.

第四, 由截面的图像可以看出, GeSi 自组织量子点存在纵向耦合现象. 这与 Tersoff 的理论预期相吻合. Tersoff 的计算说明在生长过程中, 某周期内量子点的顶部是下一周期内量子点产生的优选位置; 并且这些量子点的大小在 20 周期以后就基本均匀. 我们的三周期结构已可分辨这种趋势, 在我们生长的更多层结构中, 已能清晰地看到了这一点. 这种量子点的形成使得可能利用它制作量子点超晶格结构, 用以改变材料性能.

样品形貌的另一特点是样品表面自组织量子点分布的不均匀性. 由于生长过程中采用反射式高能电子衍射 (RHEED) 实时观察了量子点的生长, RHEED 衍射图形的变化清晰地反映了量子点的形成. 由于观察时样品静止不动, 这可能是造成量子点在 Si (113) 衬底上分布不均匀的原因之一. 另外, 生长参数的优化也是改进量子点分布均匀性的重要因素.

图 5 给出样品退火前后低温下的 PL 谱, 退火条件为 950 °C, 5 min. 图中 TO (Si-Si),

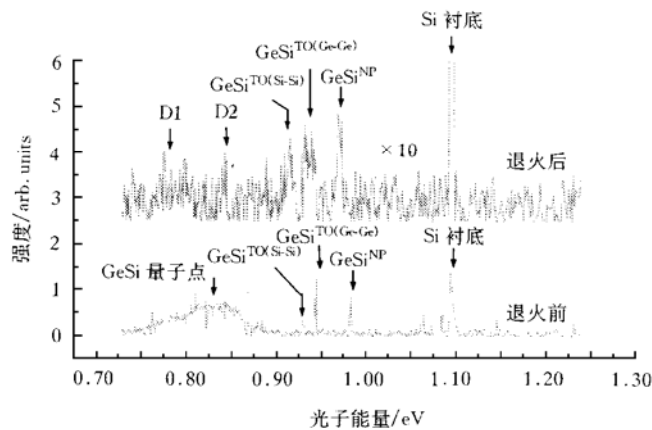


图 5 自组织 GeSi 量子点退火前后的 PL 谱

TO (Ge-Ge) 标识分别表示来自二维 GeSi 浸润层中的由相应声子辅助的光复合跃迁, NP 表示无声子参与的光复合跃迁, GeSi 量子点表示来自自组织量子点的发光峰. 对比退火前后的 PL 谱可以看出, 首先与自组织量子点的发光峰相比, 退火前 PL 谱上来自二维 GeSi 浸润层的发光峰非常弱. 这是由于浸润层较薄, 其中的载流子能级位置偏高, 而处于 GeSi 量子点中的载流子能级位置较低, 故载流子光跃迁复合主要发生在自组织量子点中, 它反映了光复合跃迁的竞争过程. 其次, 来自自组织量子点的发光峰以宽峰、低能为特点. 发光峰处于低能端是生长模式由二维转变成三维的结果<sup>[17]</sup>. 宽峰反映了自组织量子点尺寸上的不均匀性. 大的半高宽 (FWHM) 经生长条件的优化应能得到改善. 第三, 退火后样品的 PL 谱强度较退火前下降了约一个数量级. 这是由于热作用引起自组织量子点弛豫的结果. 这种弛豫表现为退火产生大量失配位错以释放 GeSi 外延层中的应力, 导致量子点坍塌, 其发光峰消失. 同时, 退火使得原二维阱层结构变宽. 退火后的截面照片见图 6. 来自二维阱层结构的发光峰显现, 量子点坍塌后, 其发光峰相对于原量子点的发光峰处

于高能端位置. 而应变弛豫产生的位错与缺陷则对 D1, D2 峰的出现有贡献.

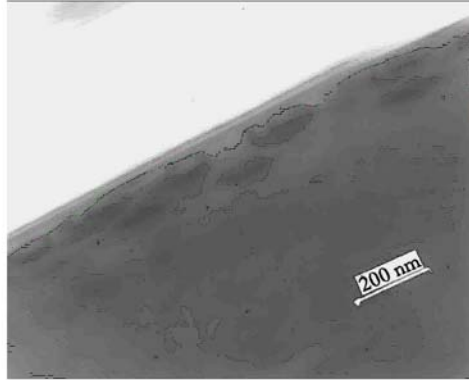


图 6 自组织 GeSi 量子点退火后的 TEM 截面图

## 4 结 论

我们对 Si(113) 衬底上生长的自组织量子点进行了观测和光荧光测量, 发现自组织量子点呈常见的金字塔状, 其分布的最可几值为 40 nm. 外延层由沿 $[1\bar{1}0]$ 方向排列的量子点和沿 $[33\bar{2}]$ 方向排列的类量子线组成. 低温下 PL 谱由半宽为 65 meV 的宽峰和二维 GeSi 浸润层发光峰组成, 经退火后量子点发光峰消失, 且有位错峰出现. 光荧光强度下降约一个数量级.

感谢吴巨博士在 TEM 测量上给予的帮助; 感谢裘晓辉博士在 AFM 测量上给予的帮助.

- [1] R. A. Soref, *Proc. of the IEEE*, **81**(1993), 1687.
- [2] J. Tersoff, C. Teichert, M. G. Lagally, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996), 1675.
- [3] Y. S. Tang, C. M. Sotomayor Torres, W. X. Ni, G. V. Hanson, *Superlattices and Microstructures*, **20**(1996), 505.
- [4] R. Notzel, N. N. Ledentsov, L. Daweritz, K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B45**(1992), 3507.
- [5] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbarars, P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.*, **63**(1993), 3203.
- [6] G. Wang, S. Fafard, D. Leonard, J. E. Bowers, J. L. Merz, Petroff, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994), 2815.
- [7] T. P. Pearsall, J. Bevk, L. C. Feldman, J. M. Bonar, J. P. Mannaerts, A. Ourmazd, *Phys. Rev. Lett.*, **58**(1987), 729.
- [8] D. J. Eaglesham, M. Cerullo, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 1943.
- [9] B. Voigtlander, A. Zinner, *Appl. Phys. Lett.*, **63**(1993), 3055.
- [10] J. Knall, J. B. Pethica, *Surface Science*, **265**(1992), 156.
- [11] R. Notzel, L. Daweritz, K. Ploog, *Phys. Rev.*, **B46**(1992), 4736.
- [12] D. J. Chadi, *Phys. Rev.*, **B29**(1983), 785.
- [13] R. Notzel, T. Fukui, H. Hasegawa, *Appl. Phys. Lett.*, **65**(1994), 2854.
- [14] R. Notzel, S. Temmyo, H. Kamada, T. Furuta, T. Tamamura, *Appl. Phys. Lett.*, **65**(1994), 457.
- [15] R. Notzel, J. Temmyo, T. Tamamura, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(1994), 3557.
- [16] J. Knall, J. B. Pethica, J. D. Todd, J. H. Wilson, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 1733.
- [17] S. Fukatsu, H. Yoshida, N. Usami, A. Fujiwara, Y. Takahashi, Y. Shiraki, R. Ito, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(1992), L1319.

## MORPHOLOGY AND PHOTOLUMINESCENCE OF GeSi SELF-ASSEMBLED QUANTUM DOT ON Si(113)

SI JUN-JIE YANG QIN-QING TENG DA WANG HONG-JIE YU JIN-ZHONG WANG QI-MING

*(State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors,*

*Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)*

GUO LI-WEI ZHOU JUN-MING

*(Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)*

(Received 10 August 1998; revised manuscript received 2 January 1999)

### ABSTRACT

Morphology of self-assembled GeSi quantum dot grown on Si(113) by Si molecular beam epitaxy has been studied by transmission electron microscopy and atomic force microscopy. Photoluminescence from the as-grown sample and annealed sample was studied. The results were analyzed and explained.

**PACC:** 7340L; 7855; 6170A