

高速率沉积磁控溅射技术制备Ge点的退火生长研究*

张鑫鑫 靳映霞[†] 叶晓松 王莞 杨宇[‡]

(云南大学光电信息材料研究所, 昆明 650091)

(2013年12月24日收到; 2014年4月8日收到修改稿)

采用磁控溅射技术在Si衬底上以350 °C沉积14 nm的非晶Ge薄膜, 通过退火改变系统生长热能, 实现了低维Ge/Si点的生长. 利用原子力显微镜(AFM)和拉曼(Raman)光谱所获得的形貌和声子振动信息, 对Ge点的形成机理和演变规律进行了研究. 实验结果表明: 在675 °C退火30 min后, 非晶Ge薄膜转变为密度高达 $8.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 的Ge点. 通过Ostwald熟化理论、表面扩散模型和对激活能的计算, 很好地解释了退火过程中, Ge原子在Si表面迁移、最终形成纳米点的行为. 研究结果表明用高速率沉积磁控溅射配合热退火制备Ge/Si纳米点的方法, 可为自组织量子点生长实验提供一定的理论支撑.

关键词: 锗纳米点, 磁控溅射, 原子迁移, 激活能

PACS: 68.55.-a, 81.15.Cd, 81.16.Dn

DOI: 10.7498/aps.63.156802

1 引言

自组装Ge量子点具有的量子效应和载流子局域效应, 可以实现Si基Ge点在近红外区域的探测和光电转化中的应用^[1-6]. 最近, Ge量子点在太阳能电池方面的应用也引起了广泛关注: 将Ge量子点嵌入纯Si太阳能电池中, 可以在原来的基础上提高10%的红外吸收^[7,8]. 目前, 研究人员对量子点的关注已从实验摸索生长演变的规律转变为利用新建立的生长理论机理来提高量子点的光电性能. 通常从动力学模型或热力学模型两个不同的角度, 对以异质材料间晶格失配为动力, 自组装形成的Si基Ge量子点生长系统进行探索.

热力学模型从能量的观点出发, 研究以阵列形式排布的三维量子点内部能量与岛的形貌演变关系. 以Shchukin等^[9]为主的研究是以金字塔形岛为基础, 他们提出对于最优尺寸的岛而言, 一

定存在最小的弹性弛豫能和最小的总能. 这种最优尺寸的岛不会发生熟化, 从而从理论上推导出岛稳定存在的条件. 这个结论被Medeiros-Ribeiro等通过扫描隧道显微镜(STM)原位观测化学气相沉积(CVD)制备量子点的实验证实^[10]. 另一方面, Medeiros-Ribeiro和Kamins等^[11,12]在利用CVD和物理气相沉积(PVD)实验制备Ge量子点的过程中, 利用STM观测到不同形貌Ge量子点共存的现象. 并提出不同形貌的岛对应不同的最低能量状态. 从而支持Shchukin热力学模型中, 关于系统能量处于最低状态能够保障Ge岛稳定存在的观点. 但是, 岛的优势分布随着生长进行连续变化是Shchukin热力学模型所不能解释的. 由此, 如果只从理想化宏观热力学角度来谈岛的生长演变, 很难准确描述原子的微观行为.

动力学模型从微观角度描述岛生长过程中的现象. Ross等在1997年和1999年提出了关于(001)晶面的Si衬底上生长Ge岛过程中, 岛从金字塔形

* 国家自然科学基金(批准号: 11274266)、云南省应用基础研究计划重点项目(批准号: 2013FA029)、云南省人才引进基金(批准号: W8090304)和云南大学校基金(批准号: 2011YB47)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: jinyingxia@ynu.edu.cn

[‡] 通讯作者. E-mail: yuyang@ynu.edu.cn

向圆顶形转变的结论^[13,14]. 他们在低能电子显微镜下原位记录了Ge岛形貌从金字塔形向圆顶形演变所产生的一系列非对称转变过程. 他们认为岛从稳定的金字塔形转变为圆顶形时, 化学势急剧变化, 对比相同体积的金字塔形和圆顶形岛的能量, 圆顶形能量比金字塔形更低. 这证实了量子点的生长过程中存在 Ostwald 熟化驱动的动力学过程. 在动力学模型中, 量子点生长的整个过程是非常复杂的. 其中, 化学势的起伏为表面原子从高化学势向低化学势区域的迁移提供了主要动力.

常规制备Ge量子点通常选用分子束外延(MBE)、CVD和PVD等低沉积速率(速率一般为0.2 nm/min)技术, 以精确控制薄膜的生长条件. 本文通过高沉积速率的直流磁控溅射技术(速率提高了近200倍)将质量沉积和点的形成过程分离, 通过在Si衬底上低温制备必要的异质Ge原子数量, 然后在高温状态调制材料生长的方法, 解决了高沉积速率设备难以制备低维材料的问题. 并以此实验方法为基础, 探索不同退火温度下, Ge点的生长及演变规律.

2 实验

在FJL560III型超高真空磁控与离子束联合溅射设备上低温溅射生长Ge薄膜. 溅射所需靶材为高纯Ge靶(纯度为99.999%), 衬底为p型Si(100)抛光片, 电阻率为1—2 $\Omega\cdot\text{cm}$, 厚度为500 μm 左右. Si衬底的预处理是按标准Shiraki方法清洗, 最后用浓度为2.5%HF溶液对衬底漂洗30 s去除表面的氧化层. 然后用高纯 N_2 吹干, 将衬底放入磁控溅射真空腔. 样品生长前, 真空腔系统的本底真空度抽至 3.0×10^{-4} Pa以下, 设定衬底温度为350 $^\circ\text{C}$, 工作气体采用纯度为5个九的Ar气, 溅射功率为100 W, 工作压强为1 Pa, 溅射时间为20 s, 平均溅射速率为0.7 nm/s. 在以上条件下生长厚度约为14 nm的Ge薄膜, 作为本文实验的初始样品.

在相同磁控溅射设备中集成退火系统, 对于相同的退火时间, 系统提供的能量与衬底温度(退火温度)成线性对应关系. 研究能量变化对Ge原子迁移行为的影响, 进而分析岛的演变规律. 我们的实验过程为: 分别在600, 625, 650, 675和700 $^\circ\text{C}$ 下进行退火, 样品依次标记为A, B, C, D和E, 退火时间均为30 min, 退火完成后自然冷却到室温.

利用日本精工SPA-400SPM型原子力显微镜(AFM)进行样品表面形貌表征, 采用轻敲扫描模

式, 测试横向精度为0.1 nm, 纵向精度为0.01 nm. Raman光谱测试采用的是英国雷尼绍(Renishaw)公司制造的显微拉曼光谱仪, 光谱分辨率为 1 cm^{-1} . 测试前对设备进行标准校正, 精确度为 1 cm^{-1} . 测试均在室温下, 相同系统测试条件下完成.

3 分析讨论

3.1 Ge岛的结晶性

图1为不同退火温度五个样品的拉曼光谱. 其中的三个峰分别是非晶 a -Ge波包, 300 cm^{-1} 附近的 c -Ge峰和 520 cm^{-1} 处的 c -Si峰, 未观察到Si-Ge混晶峰. 520 cm^{-1} 峰对应晶态Si的横向光学(TO)振动峰, 该峰为Si衬底的 Si^{TO} 峰. 文献报道 300.5 cm^{-1} 为 c -Ge的 Ge^{TO} 峰. 301 cm^{-1} 为Si倍频振动的2TA峰. 这两个峰位相差 0.5 cm^{-1} , 对于分辨率为 1 cm^{-1} 的Raman设备无法辨识. 就本文设计的实验而言, 在衬底和Ge非晶薄膜之间, 没有生长Si缓冲层, 样品均是在单晶Si表面直接生长. 因此, 可比较衬底峰与样品Si振动峰来辨识两种不同材料相近峰位的振动. Raman谱中, 样品A与Si衬底相比, 520 cm^{-1} 处的 Si^{TO} 峰强度减弱. 在 301 cm^{-1} 处的峰完全淹没在Ge的非晶包中. 因此我们判断在本文设计的系列样品中, 300 cm^{-1} 附近的振动峰为 Ge^{TO} 振动引起. 在 200 — 300 cm^{-1} 范围内, 出现的波包为 a -Ge的非晶包. 不同退火温度表明单位时间内进入相同低温系统的能量差异, 会导致系统的结晶性变化. 谱图中, 各个样品的主要差异体现在 200 — 400 cm^{-1} 范围内, 存在明显 a -Ge和 c -Ge组成的重叠峰. 说明所有样品都存在 a -Ge与 c -Ge的共存状态. 谱图中 a -Ge和 c -Ge峰位的变化可用于分析材料内部结晶和应力变化情况^[15].

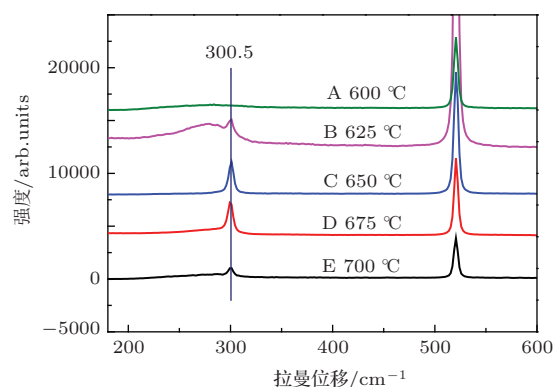


图1 不同退火温度样品的拉曼光谱

为了对这个问题进行分析, 我们使用 Gauss-Lorentz 和函数模型进行分峰拟合, 在拟合过程中令残差平方和始终保持最小状态, 以确保拟合曲线与实验曲线误差最小. 图 2 为对 200—400 cm^{-1} 区域内五个样品 Raman 谱图的分峰分析. 将上述五个样品分峰后的 *a*-Ge 和 *c*-Ge Raman 光谱中心峰位列于表 1 中, 对它们的中心峰位统一取 1 位小数, 再由拟合软件最佳优化获得半高宽的具体数据, 因 *c*-Ge 较窄, 软件优化得出 2 位小数. I_c/I_a 比值根据拟合软件中 *a*-Ge 和 *c*-Ge 的积分强度计算得出, 也保留 2 位小数.

表 1 显示温度变化对 *c*-Ge 振动峰峰位影响表现为: 随退火温度升高, 峰位蓝移(高波数方向)到 650 °C 时与体 Ge 峰位重合, 温度继续升高 *c*-Ge 峰出现红移(低波数方向), 在 700 °C 时, 峰位又接近体 Ge 的峰位. 在 Raman 测量误差范围内, 可以认为温度对 *a*-Ge 的振动峰位表现为: 随着温度的升高 *a*-Ge 峰峰位蓝移, 在 675 °C 后再红移. 峰强变化特点是, *a*-Ge 振动峰与 *c*-Ge 振动峰变化趋势相反. *a*-Ge 峰强度由大到小再变大, 而 *c*-Ge 峰强为由

小到大最后再变小.

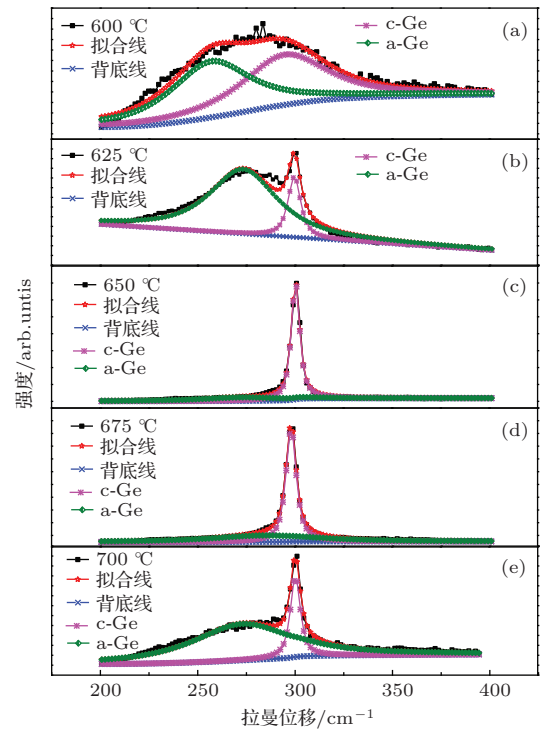


图 2 不同退火温度样品 Raman 光谱高斯拟合图 (a) 600 °C; (b) 625 °C; (c) 650 °C; (d) 675 °C; (e) 700 °C

表 1 五样品 Raman 光谱图 200—400 cm^{-1} 分峰情况

| 样品 | <i>a</i> -Ge 半高宽/ cm^{-1} | <i>a</i> -Ge 中心 峰位/ cm^{-1} | <i>c</i> -Ge 半高宽/ cm^{-1} | <i>c</i> -Ge 中心 峰位/ cm^{-1} | I_c/I_a |
|----|---------------------------------------|---|---------------------------------------|---|-----------|
| A | 53.4 | 257.8 | 50.01 | 295.8 | 0.78 |
| B | 46.4 | 274.3 | 6.33 | 298.3 | 0.57 |
| C | 49.6 | 273.4 | 5.28 | 301.0 | 4.73 |
| D | 65.0 | 285.4 | 6.35 | 297.5 | 2.27 |
| E | 60.0 | 273.4 | 6.10 | 299.3 | 0.31 |

分析 Raman 谱图和统计表 1 数据知: 当对非晶 Ge 薄膜进行不同温度退火时, 可以实现低温生长非晶 Ge 薄膜的不同晶化. 结合表中 650 °C 之前 *c*-Ge 和 *a*-Ge 峰位蓝移和两峰积分强度分析, 温度的升高 *c*-Ge 所占的比例增大, 薄膜的晶化程度提高. 退火过程中非晶 Ge 膜中的 Ge 原子摆脱原来周围原子的限制, 迁移到晶格缺陷的位置, 修复晶格, 使薄膜局部区域晶化. 随着进入系统的能量进一步升高, 薄膜中晶化区域增加, 晶化的 Ge 膜与 Si 衬底之间由于晶格失配产生应变. 为了使系统维持最小的自由能, 系统会以岛的形式释放应变能 [16–19]. 不同退火温度下薄膜中积累的应变能不同, 在 650 °C 退火 30 min 的样品, 与体 Ge 声子振动峰位几乎重合, 说明样品内部应变能基本释放.

退火温度升高, 热能的进一步增加, 系统中更多的原子参与到表面迁移中, 迁移的原子凝聚、形核、或者被表面 Ge 岛俘获, 于是岛的体积和面密度逐渐增大. 不同尺寸形貌的岛具有不同的化学势 [13,14], 在 Ostwald 熟化这个模型框架下, 小岛具有较高的化学势, 大岛的化学势较低, 原子在表面迁移过程中, 受到岛间化学势差的驱动, 出现小岛向大岛的净原子流, 形成大岛吞并小岛的结果 [12,13]. 当 Ge 岛融合, 重新进行晶格调制, 出现非晶, 这与经典的 Ostwald 熟化现象一致 [20]. 此阶段 *c*-Ge 峰位产生红移, 然后在 700 °C 退火时又接近体 Ge 的峰位, 并且 *a*-Ge 峰强度增加.

在一个周期性起伏的薄膜系统中, 系统的自由

能可以由下面公式表达 [21]:

$$E = E_{\text{facets}} + E_{\text{edges}} + \Delta E_{\text{el}}, \quad (1)$$

其中 E_{facets} 表示表面能, E_{edges} 表示岛各个边的能量, ΔE_{el} 表示弹性弛豫能.

系统自由能的演变过程是通过在薄膜表面生长岛的方式释放弹性弛豫能, 通过熟化过程减小系统的表面能, 最终降低系统自由能. 这与 AFM 检测统计的不同退火温度岛的面密度和总体积的变化趋势图相符合.

采用磁控溅射低温生长非晶 Ge 薄膜, 高温退火的方法, 在 Si 衬底上生长 Ge 纳米点. 通过 Raman 表征, 随着退火温度升高, 晶格得到修复, 在 650 °C 时, 结晶性达到最好. 当退火温度进一步升高, Ge 原子迁移增多, 不同大小的 Ge 纳米点发生熟化作用. 所以, 单位时间进入系统能量的高低对 Ge 的原子行为有着重要的影响. 为了进一步解释两者的联系, 下面我们从形貌方面来进一步分析.

3.2 Ge 原子的迁移

图 3 为利用 AFM 检测样品表面形貌的三维图和其相对应的直径和高度统计直方图. 图 4 为五个样品上岛的面密度和岛的总体积随温度变化的趋势图. 其中岛的总体积计算方法是: 以岛截面尺寸为近似圆锥体的轴向截面, 计算样品表面所有岛的体积, 然后再叠加, 即 $V = \sum v_i$.

表 2 为样品平均尺寸参数和面密度. 图 4 和表 2 数据显示: 1) 所制备岛的演变规律与 MBE 和 CVD 制备的岛相似之处是双模分布后的 Oswald 熟化过程; 2) 岛的面密度和总体积随温度升高逐渐增加, 675 °C 为岛的面密度和总体积变化的拐点; 3) 在熟化过程后期, 大岛兼并小岛, 使尺寸分布比较集中在 120 nm 左右, 离散度减小, 岛尺寸的涨落程度得到改善.

结合图 4 岛的面密度和总体积变化趋势可知, 单位时间内输入系统能量升高, 岛面密度和总体积均先增大, 675 °C 后开始减小. 在 675 °C 前, 随着输入系统的能量的增加与迁移质量增多, 这可以使用固体表面的原子迁移关系来解释 [22,23]. 进入系统的能量, 为 Ge 原子摆脱晶格束缚提供活化能. 表面迁移系数随温度升高而增大, 即温度越高, Ge 原子获得的高于活化能的能量概率就越大, 迁移系数越大, 离开原有晶格参与表面迁移的原子数量就越多.

薄膜表面化学势的涨落形成的化学势梯度限制了 Ge 原子的迁移半径和迁移方向. 在迁移过程中, 多个 Ge 原子相遇结合成键, 停留在表面化学势较低的位置, 成核长大, 或直接被表面 Ge 岛俘获, 这导致岛的面密度和总体积逐渐增加. 由于工艺中并没有将表面化学势规范呈均匀分布, 因此所生长的点是无序的, 且尺寸分布不均匀.

图 3 和图 4 统计结果显示, 在温度升高的过程中 Ge 岛演变规律符合 Ostwald 熟化现象 [9,11]. 即, 大岛小岛并存, 变为大岛兼并小岛, 大岛的尺寸变得更大. 在熟化过程中岛的面密度减小, 岛的尺寸变大, 分布相对集中. 这与 Ross 等观察到的在熟化过程中由于岛合并而尺寸变大, 且岛的尺寸分布相对集中的现象一致.

岛的统计直方图显示, 700 °C 样品中岛的尺寸分布区域是所有样品中最大的, 但 700 °C 样品所有岛的体积总和介于 625 °C 和 650 °C 样品岛体积总和之间. 我们认为 700 °C 样品体积总和减少是由于岛合并过程中, 岛中部分 Ge 原子重新进入薄膜结晶. 这个结论也可从 Raman 图谱分峰拟合结果得到证实, 分峰拟合后, 退火 700 °C 的 E 样品 Raman 图谱中 273.4 cm^{-1} 出现了 Ge 的非晶峰.

表 2 为不同退火温度点的尺寸参数和密度

| 温度 /°C | 底宽分布 | | 高度分布 | | 面密度 /cm ⁻² |
|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|--------------------------|
| | 平均底宽/nm | 底宽分布离散度/% | 平均高度/nm | 高度分布离散度/% | |
| 600 | — | — | — | — | — |
| 625 | 101.9 | 12.9 | 41.9 | 28.9 | 2.28 × 10 ⁹ |
| 650 | 96.8/35.7 | 19.0/13.8 | 75.4/28.8 | 2.7/15.2 | 6.05 × 10 ⁹ |
| 675 | 96.5 | 28.1 | 40.7 | 48.8 | 8.50 × 10 ⁹ |
| 700 | 125.0 | 4.4 | 54.0 | 2.8 | 1.28 × 10 ⁹ |

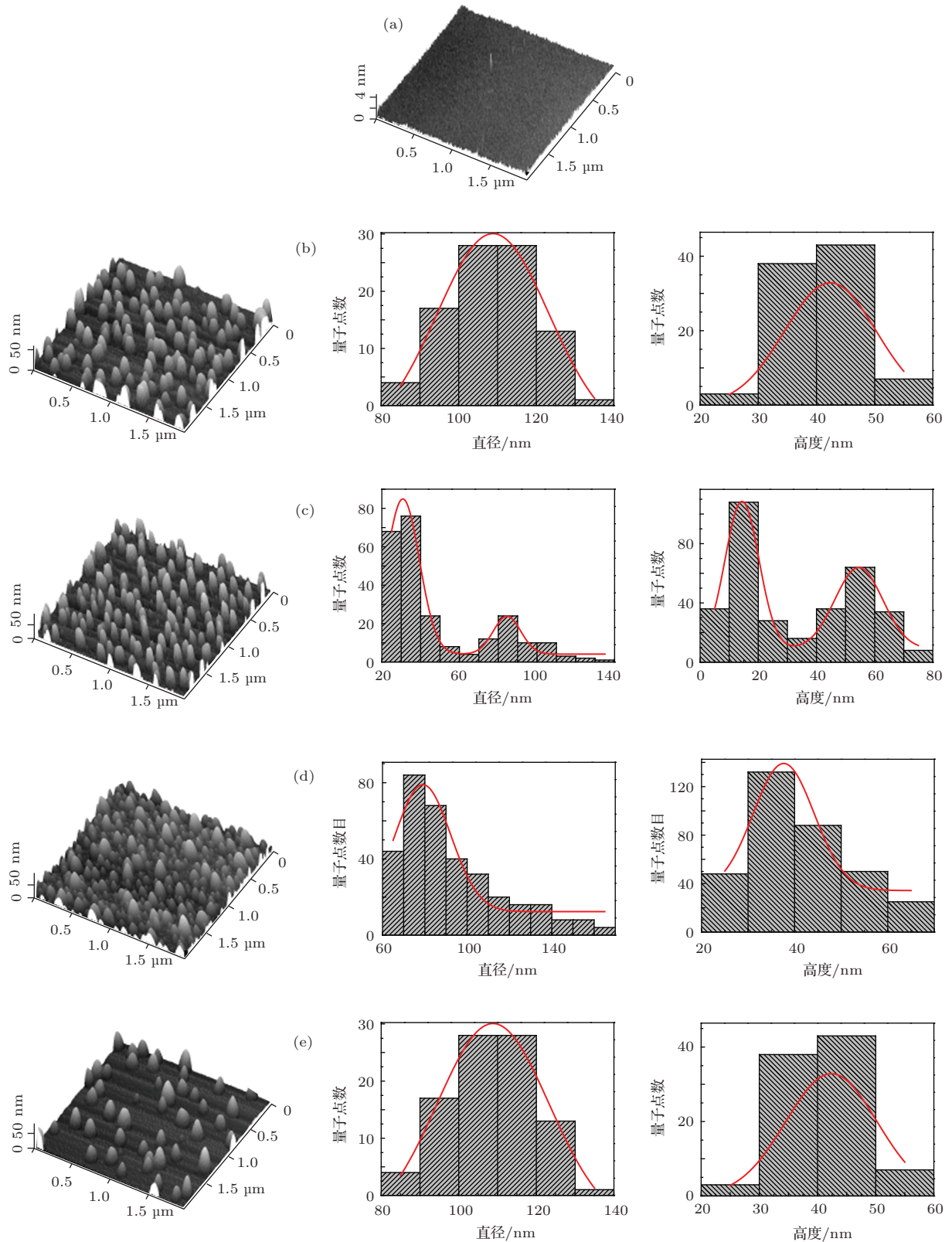


图3 不同退火温度样品表面 AFM 三维图像与其相对应的直径和高度统计直方图 (a) 600 °C; (b) 625 °C; (c) 650 °C; (d) 675 °C; (e) 700 °C

本实验设计的工艺是首先在低于原子激活能的条件下, 制备非晶 Ge 膜, 然后再向系统输入定量热能. 研究表明岛的面密度和总体积变化随着退火

温度的升高先变大后变小. 表面化学势的不均匀分布, 决定所生长的点是无序, 且尺寸不均匀. 在温度升高的过程中 Ge 岛演变规律符合 Ostwald 熟化

现象. 700 °C 样品体积总和减少是由于岛的合并过程中, 部分 Ge 原子重新进入薄膜结晶, 不再符合岛的密度和体积随温度升高而增大的趋势.

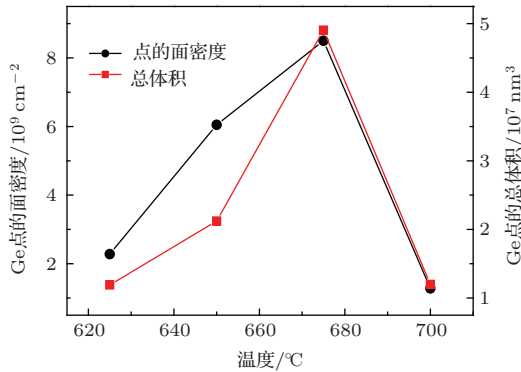


图4 在不同退火温度下 Ge 点面密度和总体积变化的趋势

3.3 激活能

为了量化原子迁移与温度的关系, 我们通过对实验数据的进一步统计和计算来分析质量迁移与激活能的关系. 以样品的 AFM 检测数据为依据, 通过已经统计的岛的尺寸, 采用 3.2 节的计算方法计算岛的质量. 在计算过程中, 假设从薄膜中迁移出的原子完全进入岛中, 迁移质量等于岛的质量.

通过计算我们将得到样品岛的总体积和质量列于表 3. 其中 ρ 是 Ge 的密度为 5.32 g/cm³. 表 3 计算结果表明, 在 675 °C 之前, 随着退火温度的升高有更多的质量转移到 Ge 纳米岛中. 这个结果也与 Pivac 和 Kovacěvića 等 [24,25] 通过实验观察发现随着退火温度的升高薄膜厚度逐渐减小, 越来越多的 Ge 原子转移到点中的结果一致. 但在 700 °C 时, 在岛合并过程中, 部分 Ge 原子又重新进入薄膜结晶, 迁移质量不等于岛的质量, 不带入激活能的计算中.

表 3 不同退火温度 Ge 纳米岛的总体积和质量

| 退火温度 T /°C | $V = \pi \sum_{i=1}^n D_i^2 h_i / 12$ /10 ⁷ nm ³ | $\Delta M = \rho \sum_{i=1}^n V_i$ /10 ⁻⁶ g |
|-----------------|---|---|
| T_1 625 | 1.191 | ΔM_1 1.58 |
| T_2 650 | 2.122 | ΔM_2 2.89 |
| T_3 675 | 4.904 | ΔM_3 6.54 |
| T_4 700 | 1.198 | ΔM_4 1.59 |

由于高温退火过程中 Ge 原子的质量迁移满足 Arrhenius 等式 [26] 的要求

$$\Delta M = M_0 \exp(-E_\alpha/kT), \quad (2)$$

其中, M_0 为独立于温度的前置因素, E_α 为将一个 Ge 原子从薄膜表层移至岛状结构中所需的激活能, k 为波尔兹曼常数.

可用 (2) 式计算 Ge 薄膜表面激活能. 将表 3 中原子迁移质量的总量代入 (2) 式计算, 计算结果如图 5 所示, 在退火过程中 Ge 原子从薄层移至岛状结构中所需的激活能 E_α 等于 2.04 eV. 这一数值与 Das 和 Kovacěvića 等 [27,25] 实验所得结果有明显的差别, 与体 Ge 的激活能 2.97 eV [28] 相差大约 1 eV. 表面原子有少的邻近原子比体 Ge, 所以表面原子相对有较小的束缚能, 所以激活能相比于体 Ge 激活能要小. 但是由于本文生长 Ge 点的方式是低温下以高沉积速率形成 Ge 膜, 然后通过退火, 转变成成为 Ge 岛. 高沉积速率溅射过程中溅射出的粒子多以高能团簇的形式沉积到 Si 衬底上, 较难迁移, 这与 MBE, CVD, PVD 的原子沉积有明显的区别, 所以本文计算出的激活能大于 Das 和 Kovacěvića 计算的 0.45 eV 和 0.4 eV, 更接近体 Ge 的激活能. 上述计算和分析存在测量和近似误差, 但是在一定程度上能说明利用纳米点的质量估算退火过程中的质量转移规律.

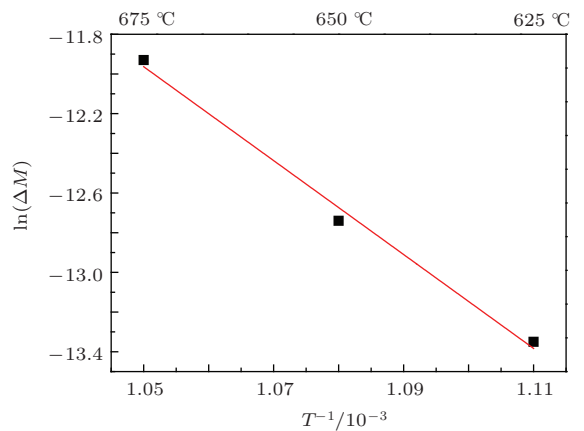


图5 激活能计算曲线

通过以上分析知: 将在 Si 衬底上高速沉积的 Ge 非晶薄膜置于退火系统中, 通过控制进入系统的能量, 当进入系统单位能量等于或高于原子激活能时, 可调制部分 Ge 原子的行为并使其完成表面迁移. 由于磁控溅射技术的高沉积速率, 溅射出的等离子体中存在一定数量的原子团簇, 原子总体迁移能力不如 MBE, CVD, PVD 等低沉积速率的原子沉积技术, 因此原子需克服高达 2.04 eV 的激活能才能在表面迁移.

4 结 论

采用磁控溅射技术,在Si衬底上低温高速溅射生长了非晶Ge薄膜,进一步采用高温退火制备Ge岛.通过对样品的Raman和AFM表征的实验数据分析,得到以下几点结论:

1.随着退火温度的升高,岛的面密度和总体积变化呈现先增大后减小的趋势,并且岛由双模分布的圆顶型向单模超大圆顶型岛演化;

2.点的演变规律符合Ostwald熟化现象,是系统通过释放应变能,减小表面能,来降低自由能的过程;

3.采用高沉积速率的磁控溅射技术制备Ge点时,可以通过控制后续退火温度来调控Ge点面密度;

4.在该种工艺制备Ge点的过程中,Ge原子需要克服高达2.04 eV的激活能阈值才能进行表面自由迁移.

感谢云南大学现代分析测试中心的袁波、俞帆和刘拥军老师在测试分析过程中给予的帮助.

参考文献

- [1] Yakimov A I, DvurechenskioeA V, Nikiforov A I, Chaeckovskioe S V, Tices S A 2003 *Semiconductors* **37** 1345
- [2] Liu Z, Li Y M, Xue C L, Cheng B W, Wang Q M 2013 *Chin. Phys. B* **22** 116804
- [3] Tong S, Liu J L, Wan J, Wang K L 2002 *Applied Physics Letters* **80** 1189
- [4] Ba L, Zeng J L, Zhang S Y, Wu ZQ 1996 *Chin. Phys.* **5** 530
- [5] Qu X X, Chen K J, Chen M R, Hu C, Li Z F, Feng D 1994 *Chin. Phys.* **3** 730
- [6] Ning Z Y, Wu X M, Chen J F, Cheng S Y, Hen Z X, Zhang S Q 1994 *Chin. Phys.* **3** 682
- [7] Liu Z, Zhou T W, Li L L, Zuo Y H, He C, Li C B, Xue C L, Cheng B W, Wang Q M 2013 *Applied Physics Letters* **103** 082101
- [8] Konle J, Presting H, Kibbel H 2003 *Physics E* **16** 596
- [9] Shchukin V A, Ledentsov N N, Kop'ev P S, Bimberg D 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 2968
- [10] Medeiros-Ribeiro G, Kamins T I, Ohlberg D A A, Stanley Williams R 1998 *Science* **279** 353
- [11] Kamins T I, Medeiros-Ribeiro G, Ohlberg D A A, Stanley Williams R 1999 *Journal of Applied Physics* **85** 1159
- [12] Kamins T I, Carr E C, Williams Rosner R S 1997 *Journal of Applied Physics* **81** 211
- [13] Ross F M, Tersoff J, Tromp R M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 984
- [14] Ross F M, Tromp R M, Reuter M C 1999 *Science* **286** 5446
- [15] Tan P H, Brunner K, Bougeard D, Abstreiter G 2003 *Phys. Rev. B* **68** 125302
- [16] Yang J, Wang C, Jin Y X, Tao D P, Yang Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 016804 (in Chinese) [杨杰, 王菘, 靳映霞, 李亮, 陶东平, 杨宇 2012 物理学报 **61** 016804]
- [17] Zhang X G, Wang C, Lu Z Q, Yang J, Yang Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 096101 (in Chinese) [张学贵, 王菘, 鲁植全, 杨杰, 李亮, 杨宇 2011 物理学报 **60** 096101]
- [18] Liu Y M, Yu Z Y and Ren X M 2009 *Chin. Phys. B* **18** 881
- [19] Wang D M, Sun X, Wu Z Q 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 720
- [20] Raab A, Springholz G 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2991
- [21] Marchenko V I 1981 *Sov. Phys. JETP.* **54** 605
- [22] Wu Z Q, Wang B *Thin Film Growth* (Beijing:Science Press) pp142-166 (in Chinese) [吴自勤, 王兵 2001 薄膜生长 (北京: 科学技术出版社) 第142—166页]
- [23] Huang K 1988 *Solid State Physics* (Beijing:Higher Education Press) pp529-555 (in Chinese) [黄昆 1988 固体物理学 (北京: 高等教育出版社) 第529—555页]
- [24] Pivac B, Kovaevi I, Dubek P, Radi N, Bernstorff S, Slaoui A 2006 *Thin. Solid. Film.* **511** 153
- [25] Kovaevi I, Pivaca B, Dubek P, Zorc H, Radi N, Bernstorff S, Campione M, Sassella A 2007 *Applied Surface Science* **253** 3034
- [26] Ditchfield R, Seebauer E G 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 1185
- [27] Das Amal K, Ghose S K, Dev B N, Kuri G, Yang T R 2000 *Applied Surface Science* **165** 260
- [28] Krikorian E, Sneed R J 1966 *J. Appl. Phys.* **37** 3665

Study on the annealing growth of Ge dots at high deposition rate by using magnetron sputtering technique*

Zhang Xin-Xin Jin Ying-Xia[†] Ye Xiao-Song Wang Chong Yang Yu[‡]

(Institute of Optoelectronic Information Materials, Yunnan University, Kunming 650091, China)

(Received 24 December 2013; revised manuscript received 8 April 2014)

Abstract

The 14 nm thick Ge thin films are firstly deposited on Si substrate at 350 °C by using the magnetron sputtering technique, then the Ge/Si dots are successfully fabricated by annealing those Ge films. According to the morphology and phonon vibration information obtained by AFM and Raman spectroscopy, the formation and evolution mechanism are studied in detail. Experimental results indicate that the amorphous Ge films have been converted to Ge dots with a density of $8.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ after 675 °C annealing for 30 min. By using Ostwald ripening theory, surface diffusion model, and calculation of the activation energy, the surface transfer and the dot formation behavior of Ge atoms can be well interpreted. Based on the fabrication technique of Ge/Si nanodots at a high deposition rate combined with the thermal annealing, we have provided a theoretical support for the experiment on self-assembled growth of Ge quantum dots.

Keywords: Ge nano-dots, magnetron sputtering, atomic migration, activation energy

PACS: 68.55.-a, 81.15.Cd, 81.16.Dn

DOI: 10.7498/aps.63.156802

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11274266), the Key project of Application Basis of Yunnan Province, China (Grant No. 2013FA029), the Normal Project of Yunnan University of China (Grant No. 2011YB47), and the Project for Excellent Talents of Yunnan Province, China (Grant No. W8090304).

[†] Corresponding author. E-mail: jinyingxia@ynu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: yuyang@ynu.edu.cn