

掠入射 X 射线衍射研究 Si 覆盖层对 Ge/Si 量子点微结构的影响*

何庆^{1;1)} 贾全杰¹ 姜晓明¹ 崔健² 蒋最敏²

1 (中国科学院高能物理研究所 北京 100039)

2 (复旦大学应用表面物理实验室 上海 200433)

摘要 利用掠入射 X 射线衍射和常规 X 射线衍射研究了 Si(001) 上的 Ge 量子点在不同厚度的 Si 覆盖层下微结构的变化, 同时用 AFM 研究了其形貌变化. 实验结果表明在小的覆盖度下, 量子点中组分的变化已十分明显, 同时量子点的形状也发生了明显的变化.

关键词 量子点 组分 应变 掠入射 X 射线衍射

1 引言

Si 是应用最广的半导体材料, 以硅集成电路、电子计算机为主体的微电子技术是信息技术的关键. 现代信息技术的一个发展方向是发展光集成技术或光电子集成技术, 用速度最快的光作为信息载体来提高信息传递速度. 但是, Si 是间接带隙半导体, 载流子迁移率低, 这些特性限制了它的进一步应用发展. 而量子点中的电子在 3 个维度上都有势垒限制, 也就是说, 电子在量子点中的自由度是零维的, 显著的量子限制效应使得量子点的激子束缚能远大于体材料中三维激子束缚能, 易于实现室温激子发光, 其中基于自组织生长的 Ge/Si 量子点的单极光转换的中红外元件最近已被证实^[1]. 所以利用量子限制效应设计发光材料结构是硅基发光材料发展的重要方向, 由于与现存的 Si 基工艺相容以及成分结构简单等特点, Ge/Si 量子点的研究成为当前研究热点之一.

利用半导体异质外延时外延材料与衬底之间的晶格失配, 当外延薄膜达到某一临界厚度时, 在应力的推动下可以实现量子点在浸润层上的自组织生长——S-K 模式^[2,3]. 由于 S-K 生长模式中量子点通过弹性弛豫来降低应变能, 因此与利用刻蚀技术制备的量子点相比而言, 这种自组织生长的量子点最

大优点是它们面积密度大, 而且几乎完全无缺陷^[4]. 但是自组织生长 Ge/Si 量子点的微结构, 如大小、形状和其中的组分、应变对生长条件十分敏感, 对其生长机制的研究仍是一个重要的内容. 另一方面, 为提高器件的效应及增大集成度, 光电子器件通常要求多层量子点结构, 这其中就需要掌握^[1]:

(1) 在 Si 衬底上淀积 Ge 后成岛(量子点)的形态及岛的大小分布;

(2) 在岛上覆盖 Si 层对量子点结构的影响.

尽管目前对无覆盖和完全埋置的 Ge/Si 量子点的微结构的研究已经有许多相关报道^[5-10], 但是对量子点在低覆盖度时形状、大小及其中组分、应变的报道却很少见到, 而这对理解量子点的生长机制和应变机理有着重要的作用.

本文用原子力显微镜(AFM)和对表面敏感的 X 射线掠入射衍射(GID)和常规 X 射线衍射(XRD)实验方法对量子点在低覆盖度时形状、大小、组分和应变的演变进行了测量, 结果发现相对于无 Si 覆盖层而言, Si 覆盖层厚度仅为 10Å 时量子点的高宽比、组分、应变变化都较大, 覆盖层厚度继续增加造成的进一步变化相对较小, 也就是说, 量子点微结构的变化主要发生在覆盖层刚刚淀积的时候.

* 国家自然科学基金(10174081)资助

1) E-mail: heqing@mail.ihep.ac.cn

2 实验

样品由复旦大学采用分子束外延 (MBE) 方法制备而成. 在 Si(001) 衬底上, 生长温度为 700℃ 时首先淀积厚度为 50nm 的 Si 缓冲层, 然后在 680℃ 时生长 0.75nm 的 Ge 层, 再在 Ge 层分别淀积厚度为 1nm, 1.6nm, 2.6nm 的 Si 覆盖层而得到编号分别为 A, B, C 和 D 的 4 块样品.

AFM 的测量是在中国科学技术大学理化科技中心的 Digital Instruments Multimode SPM NanoscopeIIIa 上完成的; GID 和 XRD 是在北京同步辐射装置 (BSRF) 1W1A 光束线漫散射站的五圆衍射仪上进行的. 通过三角弯晶单色器和反射聚焦镜获得的单色光波长为 0.1547nm, 入射狭缝为 $0.3_{\perp} \times 0.5_{//}$ mm, 测量时采用 $\theta-2\theta$ 的 1: 2 联动模式扫描, 掠入射角在 $0.05^{\circ}-0.4^{\circ}$ 之间变化.

3 结果与讨论

原子力显微镜 (AFM) 的观察显示, 在无覆盖层的样品 A 中出现了高宽比分别为 0.13 的圆顶 (Dome) 状和 0.06 的金字塔 (Pyramid) 状的两种量子点, 其中圆顶状为多数. 随着 Si 覆盖层厚度的增加, 逐渐向金字塔状转变; 在样品 B 和 C 中都出现了 3 种大小的金字塔状, 底部直径最大约 210nm, 最小约 66nm, 高宽比分布在 0.06—0.03 之间, 其中高宽比为 0.06 和 0.03 的量子点分别在样品 B 和 C 中占多数; 在样品 D 中则只有高宽比为 0.02 的量子点出现. 可见高宽比随着覆盖度增加而一直在减小, 特别是在覆盖层厚度为 2.6nm 的样品 D 中, 量子点变成了火山口形状, 即中间出现了凹陷 (图 1). 详细结果见表 1.

表 1 量子点的 AFM 测量结果

样品	平均直径/nm	平均高度/nm	平均高宽比	面积分布比例/ μm^2
A: 圆顶状	129(10)	16.6(1)	0.129(9)	20.05 个
金字塔状	101(10)	6.1(1)	0.060(5)	3.10 个
B: 金字塔状(大)	211(10)	11.6(1)	0.055(2)	10.09 个
金字塔状(中)	166(10)	7.5(1)	0.045(2)	1.09 个
金字塔状(小)	133(10)	5.2(1)	0.039(2)	5.48 个
C: 金字塔状(大)	192(10)	6.2(1)	0.032(1)	20.16 个
金字塔状(中)	152(10)	3.4(1)	0.022(1)	0.25 个
金字塔状(小)	66(10)	2.8(1)	0.042(5)	0.50 个
D: 金字塔状	170(10)	3.0(1)	0.018(0)	17.65 个

注: 表内数据括号中数值是绝对误差范围

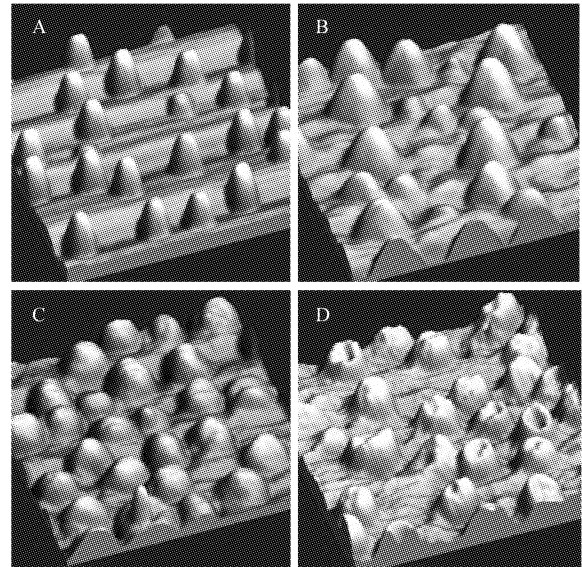


图 1 不同覆盖度的 4 块样品 AFM 测量图
A: 无 Si 覆盖层; B: 1nm Si 覆盖层;
C: 1.6nm Si 覆盖层; D: 2.6nm Si 覆盖层.

对量子点内部晶格常数和应变的测量是采用 GID 和 XRD 实现的. 通过常规 XRD 分别对样品 (004) 面所作的 Bragg 反射曲线 (图 2), 可以看出前三块样品的量子点有明显的衍射峰, 而第四块样品没有能够观察到量子点的衍射峰, 图中只显示了量子点的衍射部分.

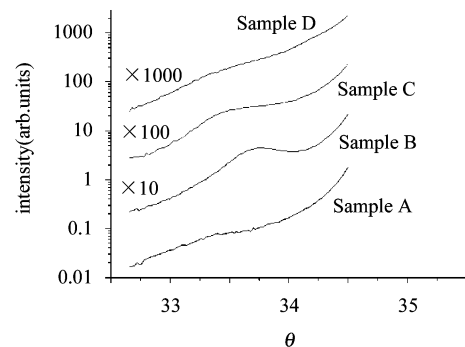


图 2 4 块样品 Si(004) 面附近的常规 XRD 衍射

为了测定量子点在样品表面下不同深度处平行于生长方向上的晶格常数, 对样品的测量采用了不同掠入射角的 GID 方式. 为了便于比较, 图 3 给出了在相同掠入射角 ($k=0.1^{\circ}$) 下不同样品的 GID 曲线.

根据 Bragg 定律由 XRD 和 GID 测量可以分别得到量子点中垂直于生长方向和表面下不同深度的平行于生长方向上的晶格常数. 结合弹性理论和 Vegard 定律, 可以计算出它们的平均组分和应变大

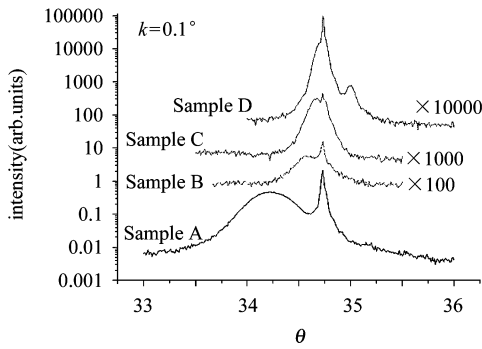


图 3 4 块样品的 Si(400) 面附近在相同掠入射角下的 GID 图谱

小(表 2):

$$\frac{a_{\perp} - a_x}{a_{\parallel} - a_x} = -\frac{2c_{12}}{c_{11}}, \quad (1)$$

式中弹性常数可以取 Si 的弹性常数, $c_{11} = 16.58 \times 10^{10} \text{ Pa}$, $c_{12} = 6.39 \times 10^{10} \text{ Pa}$.

表 2 不同覆盖度下的 Ge/Si 量子点的微结构参数

样品	a_{\parallel}	应变 ε_{\parallel}	a_{\perp}	应变 ε_{\perp}	a_x	Ge 组分 x
A	5.5007	1.284%	5.5705	2.568%	5.512	0.358
B	5.4501	0.352%	5.5541	2.266%	5.467	0.159
C	5.4392	0.151%	5.5568	2.316%	5.458	0.120
D	5.3941	-0.679%				
绝对误差	± 0.0023	± 0.00042	± 0.0016	± 0.00029	± 0.012	± 0.053

注:1)表中应变都是相对 Si 衬底而言;2)表中的水平方向晶格参数值采用的是 $k=0.1^\circ$ 时的测量值.

从表 2 来看,除了样品 D 因为 XRD 测量未能观察到量子点的衍射峰,可以看出随着 Si 覆盖层厚度的增加,量子点中的 Ge 组分越来越少,其中平行于界面方向上的晶格常数在逐渐减小,即相对于 Si 衬底而言晶格水平应变在逐渐减小.从 AFM 的图中还可以观察到样品 D 中的量子点出现了火山口形状,其形成原因有待考证.

总之,对 Si(001) 上生长的 Ge/Si 量子点加以低覆盖度的 Si 时,在覆盖初期时即使只有 1nm 的 Si 覆盖层出现,也可以观察到岛的形状有明显变化,岛中 Ge 的组分改变十分明显,减小了约一半,水平方向上晶格相对于 Si 衬底的应变减小到约为原来的 1/3,垂直方向减小了约 1/7;再增加厚度为 0.6nm 的 Si 层,水平应变减小了一半,而组分的变化只有 1/4.在增加 Si 覆盖层的过程中,岛的底宽、高度变化有一种起伏,体积变化也因此有起伏,但是高宽比始终在随着覆盖层厚度增大而逐渐减小;几乎每增加 1nm 的覆盖度,高宽比就变为原来的 1/2—1/3.也就是说,在覆盖层增加的初期,量子点的形状、大小和其中的组分、应变的变化很明显,继续增加覆盖层,这些参数的变化就比较缓慢了,可以说覆盖层对量子点微结构的影响主要体现在 Si 覆盖层出现的初期.

作者感谢中国科学技术大学理化中心王兵老师和周云申、赵凤周同学在 AFM 方面的建议和帮助.

参考文献 (References)

- Boucaud P, Thanh V Le, Yam V et al. Mat. Sci. Eng., 2002, **B89**: 36;
- Eaglesham D J, Cerullo M, Phys. Rev. Lett., 1990, **64**:1943
- LIAO X Z, ZOU J, Cockayne D J H et al. Phys. Rev., 1999, **B60**: 15605
- Stangl J, Daniel A, Holy V et al. Appl. Phys. Lett., 2001, **79**:1474
- LIAO X Z, ZOU J et al. Appl. Phys. Lett., 2000, **77**:1304
- JIANG Z M, JIANG X M, JIANG W R et al. Appl. Phys. Lett., 2000, **76**:3397
- Wiebach Th, Schmidbauer M et al. Phys. Rev., 2000, **B61**:5571
- Miller P D, LIU Chuan-Pu et al. Appl. Phys. Lett., 1999, **75**:46
- WANG X, JIANG Z M et al. Appl. Phys. Lett., 1997, **71**:3543
- JIANG XM, JIA Q J et al. High Energy Phys. and Nucl. Phys. 2000, **24**:1185 (in Chinese)
(姜晓明, 贾全杰等. 高能物理与核物理, 2000, **24**:1185)

Study of Si Caplayer Influence on Microstructure of Ge/Si Quantum Dots by Grazing Incident X-Ray Diffraction *

HE Qing^{1;1)} JIA Quan-Jie¹ JIANG Xiao-Ming¹ CUI Jian² JIANG Zui-Min²

1 (Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100039, China)

2 (Surface Physics National Key Lab., Fudan University, Shanghai 200433, China)

Abstract The microstructure and morphology of Ge quantum dots grown on Si(001) with varied coverage of Si caplayer has been studied by grazing incident diffraction (GID) and atomic force microscope (AFM) respectively. It is found that the composition as well as the morphology varies obviously with small change of coverage of Si caplayer.

Key words quantum dots, composition, strain, GID

* Supported by NSFC(10174081)

1) E-mail: heqing@mail.ihep.ac.cn