采用固体源材料外延生长应变、无核自旋的 ^{76}Ge量子阱

Maximilian Oezkent[1], *Chen-Hsun Lu*[1], *Lucas Becker*[2], *Sebastian Koelling*[3], *Robert H. Blick*[4], *Eloïse Rahier*[3], *Stefan Schönert*[5], *Nikolay Abrosimov*[1], *Thilo Remmele*[1], *Torsten Boeck*[1], *Georg Schwalb*[2], *Oussama Moutanabbir*[3], *Martin Albrecht*[1], *Carsten Richter*[1], *Jens Martin*[1], *Kevin-P. Gradwohl*[1*]莱布尼茨晶体生长研究所，*Max-Born-Str. 2, 12489* 柏林，德国[2]*Siltronic AG*，*Johannes-Hess-Straße 24, 84489* 布格豪森，德国[3]蒙特利尔理工学院工程物理系，*Succursale Centre-Ville,* 蒙特利尔，*H3C 3A7*，加拿大[4]汉堡大学混合纳米结构中心（*CHyN*），*Luruper Chaussee 149, 22761* 汉堡，德国[5]慕尼黑工业大学物理系，*James-Franck-Straße 1, 85747* 加兴，德国 **kevin-peter.gradwohl@ikz-berlin.de*

arXiv:2603.06372v1 [physics.app-ph] 6 Mar 2026

K关键词： 分子束外延、量子级、同位素富集半导体、锗硅、异质结构

锗量子阱异质结构迅速成为固态量子信息处理的领先平台；然而，材料质量限制了其可扩展性，因此需要更高的结构质量、更高的纯度以及零核自旋。在此，我们采用质量最重的锗同位素，通过蒸发高纯度 ^{76}Ge辐射探测器材料来解决这些问题；该材料已用于基础中微子粒子物理实验。我们利用这种材料制备用于量子应用的 ^{76}Ge/^{28}Si^{76}Ge量子阱，并探索相应的挑战。具体而言，我们展示了应变弛豫虚拟 $Si_{0.2}Ge_{0.8}$衬底方面的改进成果：该衬底从硅开始逐步正向渐变，位错密度低于 $3.7 \cdot 10^5 cm^{-2}$。我们还探索了无核自旋固态源分子束外延，并首次展示了 ^{76}Ge量子阱中的量子输运。通过X射线反射率测得的量子阱界面宽度达到创纪录的0.3 nm，并将其与原子探针层析和扫描透射电子显微镜的结果进行了定量比较。生长层中含核自旋杂质的浓度低于 $10^{19} cm^{-3}$，化学杂质水平低于 $10^{18} cm^{-3}$；但石墨坩埚导致的残余碳除外，其含量可能高达 10^{19} cm^{-3}。低温磁输运测量显示，在15 mK下，电子迁移率为 $6.1 \cdot 10^4$ $cm^2V^{-1}s^{-1}$，载流子密度为 $2.2 \cdot 10^{11}$ cm^{-2}，表明残余碳是主要的散射机制。

1. 引言

近几十年来，IV族半导体硅（Si）和锗（Ge）对于下一代逻辑电路和存储器件的发展至关重要 [1, 2, 3]。尽管大多数电子元件仍以硅为基础，锗层和硅锗超晶格结构的重要性却在稳步提升。例如，硅锗超晶格对于制造下一代互补场效应晶体管器件至关重要 [4]，这得益于其出色的电学性质和光学性质，以及与互补金属氧化物半导体（CMOS）技术的完全兼容性。此外，锗基器件推动了包括集成光子电路 [5, 6] 和高迁移率电子器件 [7]在内的多个领域的发展。高纯锗也是高能、高分辨率辐射探测器的首选材料。此外，由最重的锗同位素 ^{76}锗制成的此类探测器被用于最精密的中微子实验，以回答超越标准模型物理中的基本问题 [8]。

近年来，锗量子阱（QW）因其在量子技术，尤其是基于自旋的量子计算中的应用而日益受到关注 [9]。量子比特是基本构建单元，其中单个空穴，即锗价带中的未占据态，被限制在量子点（QD）中。量子点在垂直方向上由应变锗量子阱限定，在横向上则由静电栅极限定。这种器件结构占用的空间很小，远小于超导量子比特 [10]，并且能够在芯片上集成控制电子学 [11]。结合成熟先进的 CMOS制造，锗量子比特有望成为一种高度可扩展的固态量子计算技术 [9, 12]。在这方面，朝着可扩展架构迈出的重要一步——实现自旋态在数微米距离上的相干穿梭——已经得到展示 [13]。总体而言，凭借出色的量子性能，锗量子比特取得了显著进展。基于弛豫硅锗上应变锗量子阱的栅极定义型空穴自旋量子比特具有多项优势。首先，它们具有固有且可调的强自旋轨道相互作用，可实现快速的全电控量子比特控制，例如无需使用微磁体。空穴较低的有效质量

使锗/硅锗中的量子点能级间距较大，从而能够采用更大的器件尺寸，并降低光刻制造要求。[14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22]

锗价带的 p轨道特性所导致的超精细相互作用受到抑制，这一天然有利于空穴实现较长的自旋相干性；但还可以通过同位素纯化进一步增强，从而实现无核自旋的宿主材料，这是量子计算的关键要求。天然锗和硅含有一定比例的非零核自旋同位素，即 ^{73}Ge 和 ^{29}Si。通过同位素富集去除这些核自旋涨落，将使甜点工作状态得到改善，在此状态下量子比特控制最大化，而退相干最小化 [23, 24]。

1.1. 对量子级硅锗的需求

因此，旋量子比特对无核自旋材料的需求，是说明标准电子级硅锗为何不足以满足量子应用需求的典型例子。经典电子器件对核自旋并不敏感，而量子比特则十分敏感。事实上，量子应用还对杂质水平、界面锐度和应变分布提出了更严格的要求。为了强调对更高材料质量的需求以及所涉及参数的复杂性，我们引入“量子级”一词，将其定义为晶体材料目前（尚未有更高水平的）最高质量等级。

尽管此前在小规模量子比特系综上取得了一些令人鼓舞的成果，实现量子级材料质量仍然颇具挑战。要将规模扩大至所需的大量量子比特，还需进一步改进材料与工艺。例如，近期已有研究展示了通过化学气相沉积（CVD）制备无核自旋锗/硅锗量子比特衬底材料的一些可行方法 [25, 26], ，但采用固态源半导体源进行制备仍需进一步发展。在提升化学纯度和同位素纯度、实现原子级锐利界面以及提高结构完整性方面，也存在同样的问题。尤其是，界面锐度会直接影响应变分布 [27], 、限域势和载流子迁移率，而这些参数对于维持高保真自旋控制至关重要 [28]。要优化这些方面，必须准确了解生长条件、衬底形貌、温度依赖的界面形成过程以及可能的污染来源。外延工艺的优化必须针对具体方法进行。CVD和分子束外延（MBE）都是成熟的SiGe制备方法[29, 30, 31, 32, 33]。从制备角度来看，CVD是一种可工业规模化、能够生长高质量外延层的方法。然而，由于同位素富集前驱体气体供应有限，采用CVD实现同位素纯度仍具挑战 [34]。此外，采用CVD生长应变锗量子阱可能并不理想，因为所需的高温会促进应变弛豫，进而导致位错形成。相比之下，MBE，特别是固态源分子束外延，能够生长同位素富集层，并实现高精度的组分和厚度控制，且具有宽广的生长温度窗口，因此非常适合开发量子级材料。

1.2. 采用 ^{76}*Ge* 分子束外延的动机

本研究的核心方法是采用 LEGEND 合作组研发的高纯度、同位素富集 ^{76}Ge晶体，并将其用于我们先进的分子束外延系统，以制备新一代量子级 SiGe，并首次展示基于 ^{76}Ge的量子材料。通过使用 ^{28}Si固态源材料，避免了硅核自旋的影响。有关源材料规格的详细信息见补充信息 S1。

我们采用一种混合方法，利用化学气相沉积在衬底制备方面的可扩展性，以及固态源分子束外延在同位素纯化有源层生长方面的精确性。这种方法前景广阔且效率高，可减少昂贵富集源的用量，从而制备量子级异质结构。我们首先介绍化学气相沉积生长的应变弛豫缓冲层（SRB）虚拟衬底的改进结果，随后介绍采用仅使用偶数同位素的硅/锗分子束外延系统首次制备的 SiGe 异质结构。我们研究了生长温度对界面锐度和表面粗糙度的影响；在此过程中，考虑衬底质量的影响，并以在化学气相沉积生长的 $Si_{0.2}Ge_{0.8}$ SRB 上获得完全应变的锗量子阱层为目标。我们利用磁输运测量研究分子束外延无核自旋异质结构中电荷载流子的散射机制。通过这一方法，我们展示了实现材料平台的途径，以满足下一代基于锗空穴自旋的量子器件的严格要求。

另外需要提及的是，这类基于锗的 ^{76}材料因其较大的同位素质量而具有重要意义，涉及锗声子学，以及同位素质量对高浓度 p 型掺杂锗超导转变温度的影响。

2. 结果与讨论

2.1. 应变弛豫缓冲层的化学气相沉积

SRB层堆叠示意图见**图1a**。随着Ge浓度增加，面内和面外晶格参数也相应增大，并最终在完全弛豫缓冲层内趋于平稳。恒定组分的中间层，即：$Si_{0.94}Ge_{0.06}$、$Si_{0.7}Ge_{0.3}$ $Si_{0.52}Ge_{0.48}$ 、$Si_{0.34}Ge_{0.66}$，以及最后的$Si_{0.2}Ge_{0.8}$ ，均已标出。这些台阶接近硅径向切割线，表明晶格参数成比例增大，这

进而意味着发生了弛豫。根据恒定组分$Si_{0.2}Ge_{0.8}$ 峰，测得面内和面外晶格参数均为5.60 Å，与抛物线插值计算出的晶格参数[35]非常吻合。对应的RSM在(2 2 4) $Q_{\perp}$ vs $Q_{\parallel}$ 图中的结果见**图3d**。对经CMP抛光、外延就绪的SRB表面进行湿法化学清洗后，表面呈现随机粗糙形貌。样品代表性区域的原子力显微镜图像见图1b。该图以及此处未展示的更大范围扫描中，均未发现可辨识的交叉网格图案。测得粗糙度为 $\sigma_{RMS} = 0.15$ nm。图1c为Secco腐蚀后的微分干涉对比显微图，白色圆圈标示穿透位错密度。在此类SRB中，Becker等人 [30] 指出，位错驱动弛豫始于晶圆边缘的优先成核位点。通过调节生长参数，可以控制位错的滑移速度；对于$Si_{0.2}Ge_{0.8}$，最终在晶圆中心实现了 $3.7 \cdot 10^5\ cm^{-2}$ 的穿透位错密度。

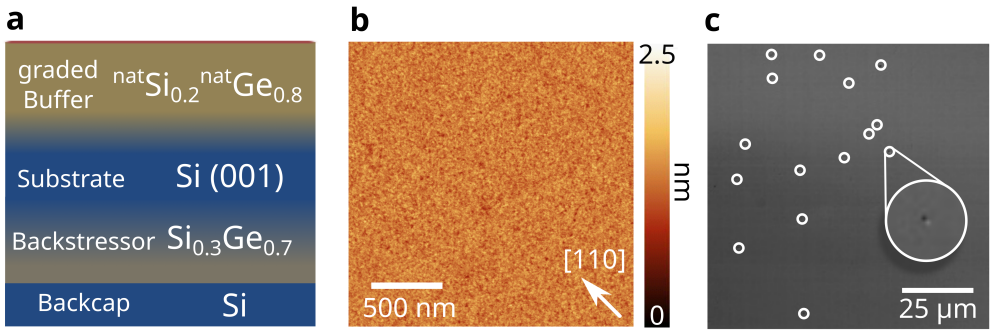


图1：CVD生长的虚拟衬底特性：（a）层堆叠的截面示意图，包含Si衬底、背应力源和渐变缓冲层。（b）对外延就绪且经过清洁的表面进行原子力显微镜扫描，扫描角度为 ≈ 45°至 [1 1 0]，表面粗糙度为 σ_{rms} = 0.15 nm。（c）12英寸应变弛豫缓冲层中心区域经Secco腐蚀后的样品显微图，白色标出了穿透位错，并附有穿透位错的局部放大图。在腐蚀后的500 x 500 µm^2 区域内统计穿透位错，得到穿透位错密度 = 3.7·10^5 cm^{-2}。

2.2. 优化的锗量子阱外延生长

无核自旋的Ge量子阱异质结构是在这些硅锗应变释放缓冲层上通过分子束外延生长制备的。一个核心挑战是获得界面清晰的量子阱。压缩应变的Ge量子阱在外延生长温度足够高时容易形成晶面并变得粗糙，这是由于弹性能随之部分释放所致。生长温度的选择会影响这一过程 T_g。本文对此进行了系统研究和优化，以尽可能降低界面宽度。

为此，我们在 $Si_{0.3}Ge_{0.7}$ 应变弛豫缓冲层上进行了一系列 Ge量子阱生长实验，其中 T_g 各不相同，生长速率为 0.02 nm/s。结果如图 2 所示。由于晶格参数仅略有不同（5.59 Å 与 5.60 Å），且应变弛豫缓冲层采用相同方法制备，因此质量相同，故这些结果适用于 80% 应变弛豫缓冲层。

在 250 °C 下生长 $h_{Ge} = 20$ nm 锗，得到的表面具有 $\sigma_{RMS} = 0.33$ nm，且未发现晶面化。将层厚加倍至 40 nm 时，情况也同样如此。将生长温度提高至 300 °C 后，从三维形貌中可以观察到表面波纹，且表面粗糙度增至 $\sigma_{RMS} = 1.50$ nm。刻面分析显示，开始出现 {1 0 5} 晶面。在 340 °C 下生长时，这种现象更加明显。此时，刻面分析发现明显的 {1 0 5} 晶面，表面粗糙度为$\sigma_{RMS} = 2.22$ nm。为探究晶面化行为，在 430 °C 下生长了 40 nm。该层呈现完整的脊谷形貌，其表面由 {1 0 5}、{1 1 3} 和 {3 15 23} 晶面构成，表面粗糙度为 $\sigma_{RMS} = 2.22$ nm。脊谷形貌归因于晶格失配外延生长中的应变弛豫。在这种情况下，尽管形成脊状结构会增加表面积，但为了释放失配诱导应变，表面通过粗化形成脊状结构在能量上更为有利。这使生长模式转变为岛状生长，并形成明显的晶面。随着温度升高，这种岛状生长模式更加显著，导致表面波纹加剧、晶面形成增多。[36, 37]

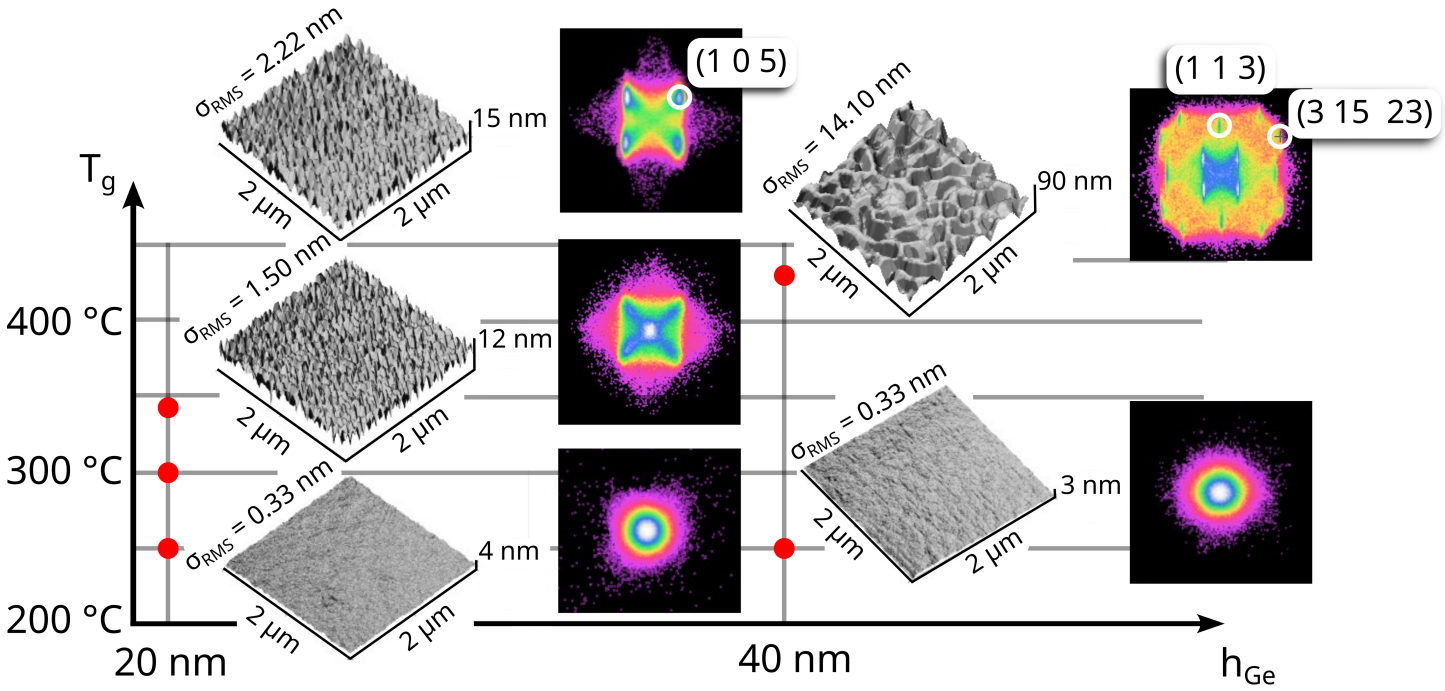


图 2：基于原子力显微镜的应变锗层形貌分析，展示了其在硅$_{0.3}$锗$_{0.7}$ 应变弛豫缓冲层上生长时，随层厚和温度变化的情况。晶面分析表明存在 {1 0 5}、{1 1 3} 和 {3 15 23} 晶面，并据此进行了相应的标定。

基于这些结果，进行了完整的锗量子阱异质结构温度渐变，如图 3b 所示。在 0.02 nm/s 的生长速率下，该渐变可获得最佳结构结果，且不会产生动力学诱导的粗化或晶面化。整个结构在生长过程中没有生长中断或挡板移动，温度渐变 T_g 也在生长过程中完成。这避免了挡板移动诱发的物质突增（峰值为 $2{\cdot}10^{-10}$ mbar），也防止了形成更多生长界面（生长中断期间杂质物种的吸附）。降低缓冲层/量子阱界面处的温度，有助于生长出完全应变锗量子阱。为抑制锗向顶层缓冲层偏析，在生长数个 SiGe 单层之前，温度一直保持较低 [38]。

2.3. 锗量子阱表征

这些应变释放缓冲层上的优化锗量子阱异质结构如图3a所示的横截面扫描透射电子显微镜图像所示。从图像中看不出异质结构存在较大的结构不均匀性。化学气相沉积/分子束外延界面显示出一层富锗界面层，这可能是清洗工艺中对硅进行选择性刻蚀所致。没有证据表明这一界面特征会影响后续生长。图3b显示了所采用的生长温度曲线，该曲线形成了图示的异质结构。

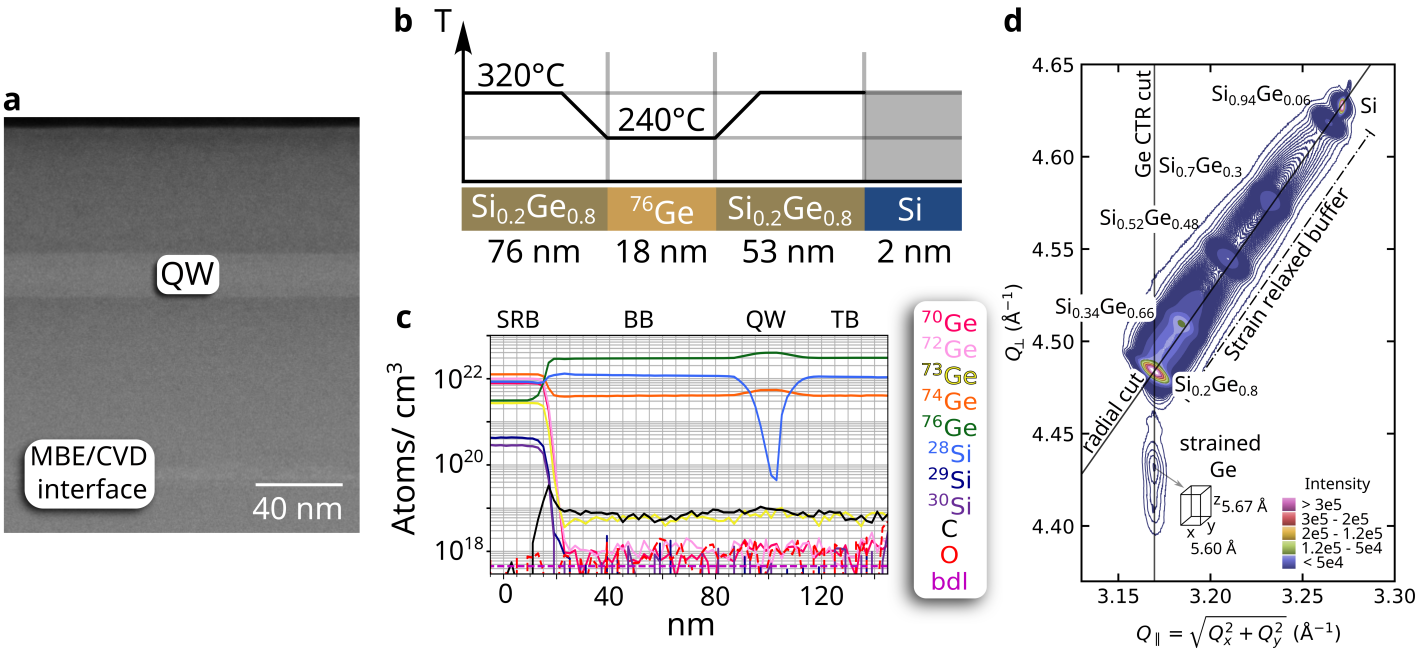


图3：无核自旋Ge/SiGe异质结构的结构表征。(a) 异质结构的横截面扫描透射电子显微镜图像，以及分子束外延过程中的相应生长温度曲线；(b) 通过改变生长温度，可以改变硅帽层的形貌。(c) 原子探针层析质谱数据，显示了异质结构中相关同位素质量的分布。(b)中显示了(2 2 4)衍射的倒易空间图（RSM），以 $Q_\perp$ 对Q∥表示。应变锗量子阱位于锗晶体截断杆切线上。图中还显示了计算得到的晶格参数。

原子探针断层扫描结果以图3c中的曲线形式呈现，右侧为应变弛豫缓冲层，其中硅和锗的同位素比例较高，碳和氧低于检测限（bdl）。关于当前条件下生长层中的杂质掺入，并结合撞击率概念进行的详细讨论，见补充信息S2。就硅同位素比而言，^{30}Si和 ^{29}Si在分子束外延生长层中的浓度低于检测限。界面宽度较大；由于数据经过分箱处理以降低噪声，量子阱层中仍可检测到 ^{28}Si。这种处理的缺点是降低了成分随深度变化的测定精度。锗同位素比从应变弛豫缓冲层到分子束外延生长层发生变化。在分子束外延层中，同位素 ^{70,72,73}Ge的浓度分别比应变弛豫缓冲层低几个数量级，分别为 $< 10^{19}$ Atoms/cm^3 和 $> 10^{21}$ Atoms/cm^3。图3d所示的（2 2 4）倒易空间图证实了锗量子阱处于张应变状态。沿锗晶体截断杆（CTR）在 $\parallel$ 至 $Q_\perp$处的截面，可以看到锗量子阱的信号，表明其晶体质量良好，且没有弛豫迹象。根据泊松效应，受压应变锗的晶格参数在面外轴 z 方向增大 $\sim$ 1.2%（5.60 Å对比5.67 Å）。锗量子阱界面的定量表征面临重大挑战，因为目标界面宽度处于 < 1 nm的量级。已有研究通过原子探针断层扫描、扫描透射电子显微镜或两者结合，对硅量子阱和锗量子阱的界面宽度进行了测定 [39, 40, 41, 42, 43]。我们结合扫描透射电子显微镜、原子探针断层扫描和X射线反射率来表征界面，旨在用 4τ 值定量评估界面锐度，并据此优化生长参数。**图4** 展示了这些方法的结果。为了直观、定性地观察锗量子阱及其同位素分布，我们展示了一个三维渲染模型。其中，图4a描绘了基于原子探针断层扫描数据重构的锗量子阱三维点云，每个点代表检测到的一个电离原子的估计位置。

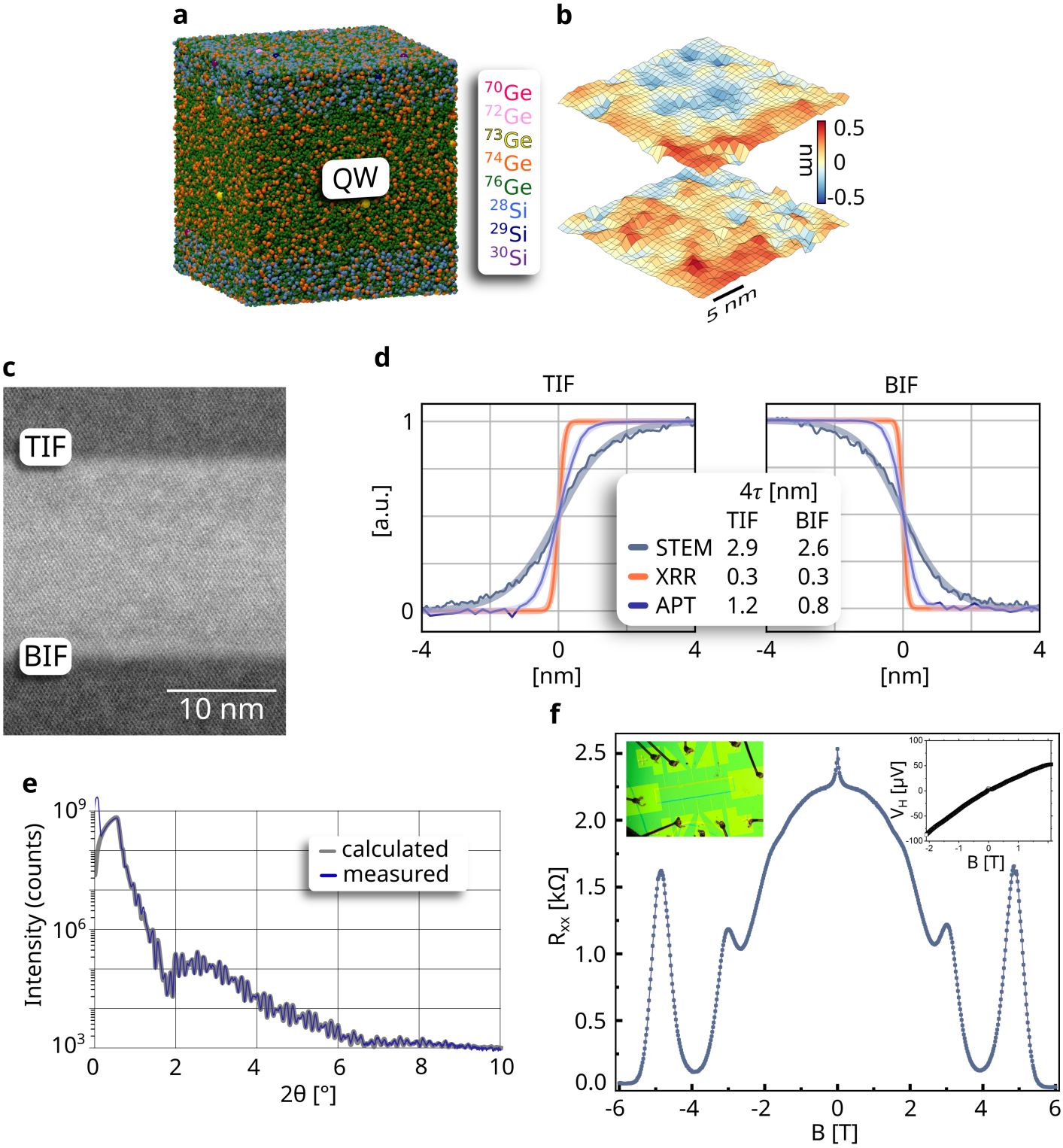


图 4：(a) 根据三维原子探针断层成像数据生成的模型，其中每个点表示检测到的电离原子的估计位置。(b) 显示等值面，底部为底部界面，顶部为顶部界面。等值面的锗浓度为：底部界面 87.6%，顶部界面 87.7%。该等值面覆盖 30 x 30 nm^2 的面积，代表量子点的横向尺寸；相应的 σ_{RMS} 值为：底部界面 0.154 nm，顶部界面 0.154 nm。(c) 扫描透射电子显微镜图像，放大显示锗量子阱，并标出了顶部界面、底部界面以及模拟的理想界面。(d) 根据扫描透射电子显微镜、X射线反射率和原子探针断层扫描分析得出的 4τ 处顶部界面和底部界面的界面锐度对比，以长度与归一化值关系图呈现。较浅（不透明度较低）的线表示相应的 S 形函数拟合。(e) X射线反射率测量数据及相应的计算拟合，以强度与 2θ 关系图呈现（底部界面的 σ_{RMS} 值为 0.106 nm，顶部界面为 0.147 nm）。(f) 在 15 mK、零背栅电压下对锗/硅锗二维电子气进行的低温磁输运测量。左上方插图为霍尔条几何结构，右上方为霍尔斜率图。

基于重构的三维原子探针断层成像数据集，沿生长方向的浓度剖面用于确定量子阱界面宽度。[44, 45]在沿该剖面进行的 S 形拟合拐点所对应的 Ge 含量处创建等值面。图 4b 展示了这一结果，其中底部表面代表 Ge 含量为 87.6% 的底部界面（BIF）

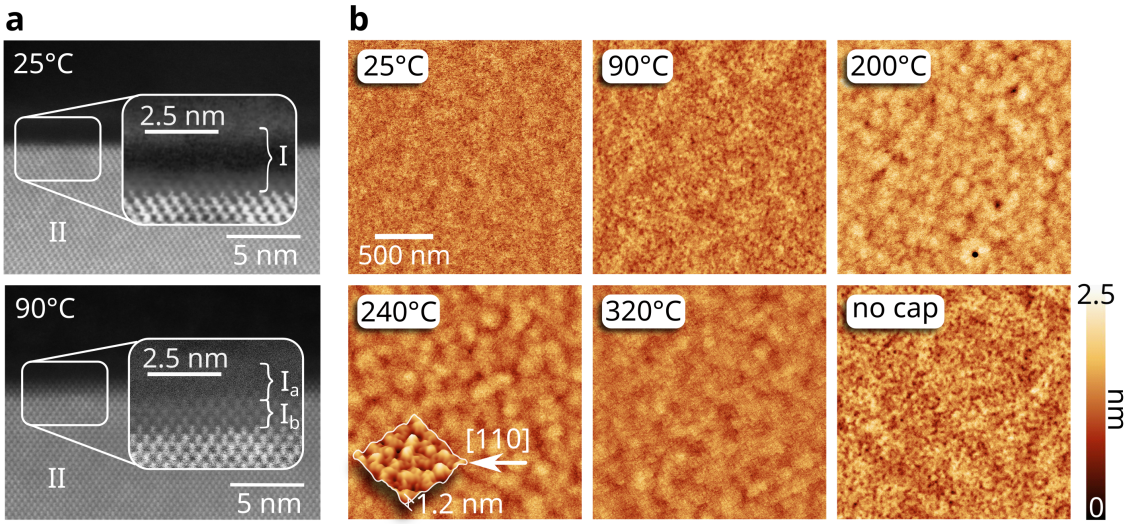
顶部表面则代表 Ge 含量为 87.7% 的顶部界面（TIF）。该等值面覆盖 30 x 30 nm^2 的区域，其尺寸约相当于一个量子点。[46] 等值面显示没有较大的起伏，整体呈现均匀的粗糙形貌。结合图 4c 所示的 STEM 局部放大图，也沿生长方向采用 S 形误差函数拟合对量子阱界面进行分析。此外，还进行了 XRR 测量，可对受照区域（范围为 cm^2 ）进行更广泛的统计分析。图 4e 显示了沿 2θ 测得的剖面及拟合曲线。所得信息包括 MBE 生长结构中每一层的密度、厚度和界面粗糙度。密度及由此得到的 SiGe 组分，以及厚度信息，均与 STEM 和 APT 获得的数值一致。图 4d 展示了 APT、STEM 和 XRR 所得界面形状与相应 4τ 数值的对比。各方法的 4τ 数值均由拟合的 S 形曲线（较浅颜色）得出。所得数据表明，各方法呈现的界面宽度存在差异，这一点也体现在 4τ 数值中。基于 STEM 的界面分析结果显示界面最宽，这主要是由于薄片厚度（> 200 nm）带来的噪声。APT 测得的界面较窄，但必须考虑数据采集和后续分析过程中产生的影响因素，例如位置不确定性和探测效率。XRR 得到的表观界面最为锐利，因为该技术探测较大的横向区域，并测量垂直于表面的平均电子密度剖面。影响 APT 测量的微观原子起伏对 XRR 的影响相对较小，因此测得的界面更平滑、更锐利。表面粗糙度或超出仪器分辨率的界面混合等其他因素仍可能使 XRR 测得的界面变宽，但在典型条件下，对于同一样品，XRR 通常得到最锐利的表观界面。在评估界面时，应将这些方法互为补充；在这一范围内，无法给出绝对的界面粗糙度值。

*2.4. Si*覆盖层

Si覆盖层旨在为后续器件制造提供定义明确且可控的表面，并通过减少界面陷阱形成来抑制非预期的电荷噪声。这些陷阱源于不均匀形成的锗和硅氧化物，因此需要采用不含锗的硅帽层。

因此，在锗含量为 80% 的 Ge缓冲层上进行Si覆盖层外延面临诸多挑战。超过 3% 的应变将无弛豫覆盖层的厚度限制在 2 nm。Ge缓冲层顶层缓冲层中的锗偏析到覆盖层中，使得难以在这几层单层厚的盖层中实现所需的SiGe浓度梯度，即锗含量从 80% 降至基本为 0%。在此，我们系统地研究了 ^{28}Si覆盖层在 ^{28}Si^{76}Ge势垒中的外延生长。

图5b展示了在锗量子阱异质结构顶部生长的2 nm硅盖层温度系列的原子力显微镜图像。原子力显微镜测量在生长后立即进行，空气暴露时间少于30 min。作为参考，还展示了未覆盖异质结构。各温度步进对应的 σ_{RMS} 值如图5c所示。在 T_{cap} 为 25 °C时，形成随机粗糙表面，其 $\sigma_{RMS} = 0.28$ 为nm。为弥合320 °C的顶层缓冲层生长与硅盖层沉积之间的温差，所需的生长中断会导致冷却时间超过10 h，并涉及挡板移动。在此温度下，假定形成非晶盖层；图5所示的样品表面截面扫描透射电子显微镜图像支持这一假设。在底部（II）的$Si_{0.2}Ge_{0.8}$ 层中，没有显示晶态硅层的对比度。聚焦于顶部区域并采用限制对比度自适应直方图均衡化增强局部对比度后，在与预期2 nm硅盖层高度一致的位置I处，出现了微弱的界面对比度。这种对比度源于非晶硅与胶层之间界面产生的菲涅耳条纹。该界面的确切宽度、形状和位置取决于束流离焦等因素，因此仅具有定性参考价值。相比之下，对 $T_{cap} = 90$°C样品的扫描透射电子显微镜分析显示，顶部区域存在明显的对比度变化： I_a 和 I_b。虽然 I_a 的对比度与区域 I相当，但 I_b 明显比周围的顶层缓冲层区域更亮，表明非晶且部分氧化的硅下方存在晶态硅盖层。在 $T_{cap} = 240$°C时，底层表面起伏最为明显，最大振幅约为1.2 nm；原子力显微镜图像以三维表面形式突显了这一点。这些圆钝特征可能源于应变诱导波纹的初始形成（参见图2），也可能由Ge偏析进入盖层所致，从而导致表面形貌起伏。以 320 °C生长盖层会形成台阶（$\sigma_{RMS} = 0.16$ nm）；增强的表面扩散使硅吸附原子能够占据能量有利位点，但也会加剧锗偏析进入盖层。总体而言，由于薄硅层具有高度应变，硅盖层的表面比未覆盖结构更平滑。由于在 $T_{\mathrm{cap}} = 240$ °C下覆盖无需中断生长，且可形成平滑、无台阶的盖层，未来的器件结构将采用此条件进行覆盖。



c

T_{cap}[°C]	σ_{RMS}[nm]
25	0.28
90	0.23
200	0.34
240	0.24
320	0.16
no cap	0.30

图5：（a）不同生长温度下生长的硅帽层表面：图中为25 °C下生长的非晶盖层，以及90 °C下生长的结晶且部分氧化的硅帽层的局部扫描透射电子显微镜图像。I、I_a 和I_b 表示局部扫描透射电子显微镜图像中硅帽层的不同形貌，II表示下方的顶部势垒层。（b） 2·2 μm^2 原子力显微镜图像及相应的生长温度。图中还显示了240 °C下表面形貌的三维表示。各次原子力显微镜测量对应的 σ_{RMS} 列于（c）中的表格。

2.5. 磁输运测量

在$T = 15$mK、背栅电压为零的条件下，对锗/硅锗二维电子气（2DEG）进行的低温磁输运测量显示，纵向电阻 R（B）平滑且对称，并在零磁场处出现明显峰值，如图4h所示。该零场峰是弱局域化的特征，反映了扩散输运状态下的相干反向散射。随着 $|B|$增加，磁阻单调变化；在较高磁场范围内出现舒布尼科夫–德哈斯振荡特征，表明载流子密度和迁移率适中。测量时，我们在100 MΩ预电阻两端施加1 V交流激励电压，得到10 nA的电流。霍尔信号振幅约为 $50\,\mu$V。霍尔条几何结构为 $W = 20\,\mu$m、 $L = 100\,\mu$m（$W/L = 0.2$），如图中左侧插图所示。零磁场下的纵向电阻约为 $R_{xx} \approx 2.35$kΩ。根据霍尔斜率 $dV_{xy}/dB = 2.85\times10^{-5}$V/T，对应于 $dR_{xy}/dB = 2.85\times10^{3}\,\Omega$/T。由此得到载流子密度为 $n_s \approx 2.2\times10^{11}$ cm^{-2}。根据片电阻率 $\rho \approx 470\Omega/cm$，可得迁移率为 $\mu \approx 6.1\times10^{4}$ cm^2/Vs。这些结果，尤其是载流子密度与测得的碳浓度相结合，使我们推断残余碳是锗量子阱中的主要散射机制。

3. 结论

我们展示了利用分子束外延中的固态源材料，在生长压力低于 $4\cdot10^{-10}$ mbar的条件下，外延生长无核自旋 ^{76}Ge/^{28}Si^{76}Ge量子阱异质结构，并阐明了相关的生长挑战及其对材料质量的影响，包括界面构成、化学与同位素纯度以及磁输运特性。通过刻蚀坑密度分析测定，所生长的应变释放缓冲层SiGe缓冲层的穿透位错密度为$3.7\cdot10^{5}$ cm^{-2}，标称组成为$Si_{0.2}Ge_{0.8}$。后者由倒易空间图确定。该衬底使得无需使用同位素富集材料（较薄的活性 ^{76}Ge量子阱异质结构除外），即可通过分子束外延生长高质量的无核自旋材料。我们开发了一个分子束外延生长窗口，将Ge偏析、表面粗糙度及背景杂质污染纳入考量。由此获得了完全应变的 ^{76}Ge量子阱异质结构，其顶部（$4\tau_{TIF}$： $0.3-2.9\ nm$）和底部（$4\tau_{TIF}$： $0.3-2.6\ nm$）界面均十分陡峭。此外，我们还研究了在$Si_{0.2}Ge_{0.8}$ 上优化的 ^{28}硅盖层的外延生长。我们基于X射线反射率、原子探针断层扫描和扫描透射电子显微镜等互补方法，对界面陡峭度进行了定量评估和比较。通过原子探针断层扫描研究了同位素纯度和化学纯度，结果显示核自旋浓度低于 10^{19} cm^{-3}，除碳以外的所有杂质浓度均低于 10^{18} cm^{-3}的检测限。残余碳浓度可归因于锗源的石墨坩埚；这一结论是通过分析原位质谱测定的外延生长过程中碳的吸收率得出的。此外，我们进行了低温磁输运测量，结果表明，在15 mK、载流子密度为$n_s \approx 2.2\cdot10^{11}$时，迁移率为 $\mu \approx 6.1\cdot10^{4}$ cm^2/Vs；这被归因于残余碳浓度对电荷载流子的散射。

4. 实验部分

4.1. 化学气相沉积

我们采用使用含氯前驱体制备的化学气相沉积生长 SiGe 应变释放缓冲层，这种方法能够在较高生长速率和较高生长温度下获得质量最高的应变释放缓冲层。化学气相沉积生长的 12 英寸应变释放缓冲层示意图如下

见**图1a**，其中 Si(0 0 1) 为衬底，底部 $Si_{0.3}Ge_{0.7}$ 层作为背应力层并包含 Si背帽层，线性渐变缓冲层的 Ge含量逐渐增加，顶部 $Si_{0.2}Ge_{0.8}$ 层则具有恒定组分；整个结构总厚度达数百 μm [47, 30]。应变释放缓冲层在 ASM E3200 化学气相沉积反应器中，以 $GeCl_4$, SiH_2Cl_2 为前驱体、H_2 为载气，在 300 mm Si晶圆上生长。沉积在高温（>800 °C）和大气压条件下进行。外延生长前，对晶圆进行化学机械抛光，以平整明显的交叉网格图案。

4.2. 分子束外延

关于使用无核自旋固态源 ^{76}锗和 ^{28}硅制备无核自旋Ge/SiGe异质结构所需关键组件的详细讨论，见补充信息 S1 和 S3。

所用分子束外延腔室的基底压力为 $3 \cdot 10^{-11}$ mbar，残余气体由四极杆质谱仪（HiQuad Quadrupole Mass Spectrometer QMG 700）分析，检测限约为 10^{-14} mbar，检测范围最高可达 100 u。质谱仪置于样品下方，距离样品 50 cm，并略微倾斜，从而能够高效检测样品表面逸出的物种。使用液氮（LN_2）冷屏使腔室壁温降至 77 K，因此在待机状态下仅能检测到 2 u。随后，在$4 \cdot 10^{-10}$ mbar 的生长压力下，检测到的质量数中，2 u（分子氢）以高出数个数量级的浓度占主导，其次是在 ^{28}硅 MBE 装置中检测到的 28 u 气体种类。

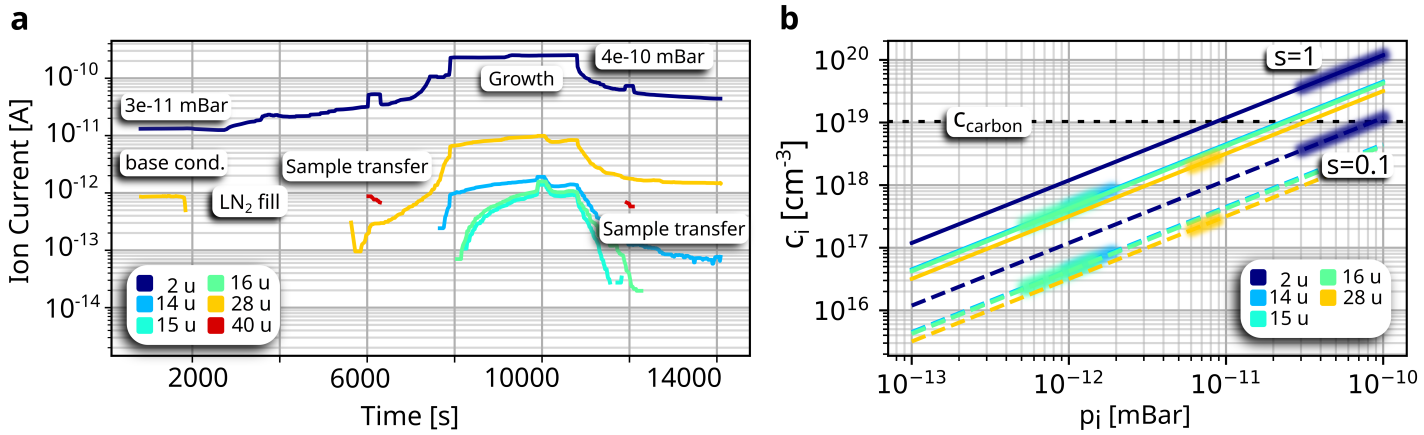


图6: （a）基态下的质谱仪读数，基压为 3e-11 mbar。持续使用 LN_2 fill 冷却分子束外延腔壁，直至开始生长并结束生长。（b）不同分子质量下，计算得到的杂质浓度随分压的变化。曲线对应于（a）中测得的质量，其中表面黏附系数分别为 s $= 1$ （实线）和 s $= 0.1$（虚线）。

将 12英寸应变释放缓冲层晶圆切割并锯切成 25 x 25 mm^2 样品片。生长前，对衬底进行湿法化学清洗。首先在超声波清洗槽中用丙酮和正丙醇进行脱脂，随后浸入 1:4 的氢氟酸（HF 50%）溶液中 60 s，以去除残余有机污染和原生氧化物。此步骤还会氢化物钝化表面，可通过其疏水性观察到这一点。 [48, 49,50, 51, 52] 每个步骤后均使用 15 MΩcm 去离子水冲洗。所有使用的溶液均符合超高纯电子级标准。从最后一步清洗到将其装入手套箱进样锁之间，暴露在空气中的时间为 < 15 s。手套箱内为 5N 氩气氛，衬底在其中转移至超高真空进样锁载台。此步骤可最大限度减少环境大气污染，并利用更洁净的超高真空条件。随后在制备腔室中将衬底于 650 °C 退火 10 min（10^{-10} mbar），以使氢、残余氧和可能存在的碳物种从衬底表面脱附。

4.3. 表征方法

AFM

使用 Bruker Dimension Icon 原子力显微镜（AFM）在峰值力轻敲模式下研究生长层的形貌。AFM 数据的评估和处理通过软件 Gwyddion [53]完成，其中包括通过平均平面扣除和三次多项式数据校正来减少测量伪影的数据校正。此外，选择以 3D 方式显示数据，以定性呈现表面形貌。使用 Gwyddion刻面分析工具进行刻面分析；该工具通过计算相对于平均表面的表面法线来确定局部表面取向的分布，并根据斜率和方向将其归类为不同晶面（详情参见 Gwyddion 手册）。利用晶面的角度信息确定并标定这些晶面的 h k l 指数。扫描方向相对于交叉影线图案倾斜 $\approx 45°$ 至 [1 1 0]，以避免误解交叉影线图案以及 AFM 扫描逐行变化所造成的影响。

XRD
为揭示生长异质结构的化学、同位素和结构性质，采用了多种表征技术。使用 X射线衍射（XRD）通过测量 (2 2 4) 衍射峰的倒易空间图（RSM）来研究 Ge量子阱的应变。使用 X射线反射率（XRR）及后续数据建模来确定层厚和界面粗糙度，并指示层组分。XRR 和 XRD 测量使用 Rigaku 的 SmartLab X射线衍射仪进行，该仪器配备 Cu K_α 阳极，工作电压和电流分别为 45 kV 和 200 mA，并配有 HyPix-3000 混合像素阵列探测器。进行 XRR 测量时，仪器采用平行光束几何，使用 0.25° 索勒狭缝和 0.2 mm 接收狭缝，在角分辨率与信号强度之间取得折衷。进行 XRD 实验时，仪器以高分辨率模式运行，不使用接收光学元件，以最大限度地采集衍射信号。使用 pyXRR Python 软件包 [54],对 XRR 数据建模；该软件包利用菲涅尔方程和 Parratt形式体系模拟反射率，并使用 lmfit 采用最小二乘最小化方法进行曲线拟合。

STEM
采用扫描透射电子显微术（STEM）测定各层的厚度和组分，以及界面的宽度。STEM 研究使用像差校正的 FEI Titan 80-300 TEM 完成，工作电压为 300 kV。环形暗场探测器的名义收集角范围为 36–150 mrad。沿 [1 1 0] 晶带轴采集原子分辨率环形暗场扫描透射电子显微术（ADF-STEM）图像。通过机械抛光和使用 Gatan 精密离子抛光系统（PIPS）进行常规离子减薄制备样品，以实现电子透明。采用原子探针断层成像（APT）测定层厚、层组分、界面粗糙度以及随深度变化的同位素组成。*A*

PT
APT 样品使用镓聚焦离子束，在 FEI Helios Nanolab 600 双束扫描电子显微镜中制备，工作电压为 30 kV。样品冷却至 25 K，并在 CAMECA Invizo 6000 中进行测量。

缺陷腐蚀
Secco [55] 之后进行 2 分钟的选择性缺陷腐蚀，并结合使用微分干涉对比（DIC）模式的显微镜，通过在 500 x 500 μm^2 代表性区域内计数，测定穿透位错密度（TDD）。

补充信息
补充信息可从 Wiley在线图书馆 获取，也可向作者索取 .

致谢
我们感谢欧洲COST行动OPERA（CA-20116）通过短期科学考察项目提供的资金支持，以及德国联邦教育与研究部（BMBF）通过 QUASAR 项目（项目编号 FKZ 13N15659）提供的资金支持。此外，我们感谢欧洲研究理事会（ERC）通过ERC高级资助项目GemX [56]提供的资金支持。

利益冲突
作者声明不存在利益冲突。

数据可用性声明
本研究的研究结果 可向通讯作者提出合理请求后获取 .

参考文献

[1] R. Pillarisetty，《Nature》2011年，479，7373 324。

[2] P. Goley，M. Hudait，《材料》2014年，7，3 2301。

[3] D. Hiller，R. Duffy，V. Georgiev，W. Weber，《固体物理学（a）》2023年，220，13 2300429。

[4] P. Schuddinck，F. M. Bufler，Y. Xiang，A. Farokhnejad，G. Mirabelli，A. Vandooren，B. Chehab，A. Gupta，C. R. Neve，G. Hellings，J. Ryckaert，载于《2022年 IEEE 超大规模集成电路技术与电路研讨会（超大规模集成电路技术与电路）》，ISSN 2158-9682，2022年365–366。

[5] D. Marris-Morini, V. Vakarin, J. M. Ramirez, Q. Liu, A. Ballabio, J. Frigerio, M. Montesinos, C. Alonso-Ramos, X. L. Roux, S. Serna, D. Benedikovic, D. Chrastina, L. Vivien, G. Isella,《纳米光子学》 **2018**，*7*，11 1781。

[6] O. Moutanabbir, S. Assali, X. Gong, E. O'Reilly, C. A. Broderick, B. Marzban, J. Witzens, W. Du, S.-Q. Yu, A. Chelnokov, D. Buca, D. Nam,《应用物理快报》 **2021**，*118*，11 110502。

[7] A.Toriumi, T. Nishimura,《日本应用物理学杂志》**2017年**，*57*，1 010101 .

[8] L. C. N. A. 等，arXiv 预印本 arXiv:2107.11462 2021年。[9] G. Scappucci, C. Kloeffel, F. A. Zwanenburg, D. Loss, M. Myronov, J.-J. Zhang, S. D. Franceschi, G. Katsaros, M. Veldhorst, Nature Reviews. Materials 2021年，6，10 926。[10] A. Krasnok, P. Dhakal, A. Fedorov, P. Frigola, M. Kelly, S. Kutsaev, Applied Physics Reviews 2024年，11，1 011302。[11] L. E. A. Stehouwer, C. X. Yu, B. van Straaten, A. Tosato, V. John, D. D. Esposti, A. Elsayed, D. Costa, S. D. Oosterhout, N. W. Hendrickx, M. Veldhorst, F. Borsoi, G. Scappucci, 利用外延应变锗实现微米尺度低噪声自旋量子比特的扩展，2024年。[12] P. Stano, D. Loss, Nature Reviews Physics 2022年，4，10 672。[13] F. van Riggelen-Doelman, C.-A. Wang, S. L. de Snoo, W. I. L. Lawrie, N. W. Hendrickx, M. Rimbach-Russ, A. Sammak, G. Scappucci, C. Déprez, M. Veldhorst, Nature Communications 2024年，15 5716。[14] N. W. Hendrickx, W. I. L. Lawrie, L. Petit, A. Sammak, G. Scappucci, M. Veldhorst, Nature Communications 2020年，11，1 3478。[15] N. W. Hendrickx, D. P. Franke, A. Sammak, G. Scappucci, M. Veldhorst, Nature 2020年，577，7791 487。[16] N. W. Hendrickx, W. I. L. Lawrie, M. Russ, F. van Riggelen, S. L. de Snoo, R. N. Schouten, A. Sammak, G. Scappucci, M. Veldhorst, Nature 2021年，591，7851 580。[17] A. Bogan, S. Studenikin, M. Korkusinski, L. Gaudreau, P. Zawadzki, A. Sachrajda, L. Tracy, J. Reno, T. Hargett, Communications Physics 2019年，2，1 1。[18] H. Watzinger, J. Kukučka, L. Vukušić, F. Gao, T. Wang, F. Schäffler, J.-J. Zhang, G. Katsaros, Nature Co mmunications 2018年，9，1 3902。[19] D. Jirovec, P. M. Mutter, A. Hofmann, A. Crippa, M. Rychetsky, D. L. Craig, J. Kukucka, F. Martins, A. Ballabio, N. Ares, D. Chrastina, G. Isella, G. Burkard, G. Katsaros, Physical Review Letters 2022年，128，12 126803。[20] K. Wang, G. Xu, F. Gao, H. Liu, R.-L. Ma, X. Zhang, Z. Wang, G. Cao, T. Wang, J.-J. Zhang, D. Culcer, X. Hu, H.-W. Jiang, H.-O. Li, G.-C. Guo, G.-P. Guo, Nature Communications 2022年，13，1 206。[21] S. Bosco, D. Loss, Physical Review Letters 2021年，127，19 190501。[22] P. Del Vecchio, O. Moutanabbir, Physical Review B 2023年，107，16 L161406。[23] N. W. Hendrickx, L. Massai, M. Mergenthaler, F. J. Schupp, S. Paredes, S. W. Bedell, G. Salis, A. Fuhrer, Nature Materials 2024年，23，7 920。[24] L. E. A. Stehouwer, C. X. Yu, B. Van Straaten, A. Tosato, V. John, D. Degli Esposti, A. Elsayed, D. Costa, S. D. Oosterhout, N. W. Hendrickx, M. Veldhorst, F. Borsoi, G. Scappucci, Nature Materials 2025年。[25] O. Moutanabbir, S. Assali, A. Attiaoui, G. Daligou, P. Daoust, P. D. Vecchio, S. Koelling, L. Luo, N. Rotaru, Advanced Materials 2024年，36，8 2305703。[26] P. Daoust, N. Rotaru, D. Biswas, S. Koelling, E. Rahier, A. Dubé-Valade, P. D. Vecchio, M. S. Edwards, M. Tanvir, E. Sajadi, J. Salfi, O. Moutanabbir, 在工业 SiGe 缓冲层晶圆上生长的无核自旋 70Ge/28Si70Ge 量子阱异质结构，2025年。[27] C. Corley-Wiciak, C. Richter, M. H. Zoellner, I. Zaitsev, C. L. Manganelli, E. Zatterin, T. U. Schülli, A. A. Corley-Wiciak, J. Katzer, F. Reichmann, W. M. Klesse, N. W. Hendrickx, A. Sammak, M. Veldhorst, G. Scappucci, M. Virgilio, G. Capellini, ACS Applied Materials & Interfaces 2023年，15，2 3119。[28] D. Costa, L. E. A. Stehouwer, Y. Huang, S. Martí-Sánchez, D. Degli Esposti, J. Arbiol, G. Scappucci, 《应用物理快报》2024年，125，22 222104。[29] H. Tetzner, A. A. Corley-Wiciak, A. J. Devaiya, O. Concepción, D. Stolarek, M. A. Schubert, Y. Yamamoto, D. Buca, G. Capellini, 《应用物理快报》2025年，127，25 251901。[30] L. Becker, P. Storck, T. Schulz, M. H. Zoellner, L. Di Gaspare, F. Rovaris, A. Marzegalli, F. Montalenti, M. De Seta, G. Capellini, G. Schwalb, T. Schroeder, M. Albrecht, Journal of Applied Physics 2020年，128，21 215305。[31] A. Nigro, E. Jutzi, N. Forrer, A. Hofmann, G. Gadea, I. Zardo, Physical Review Materials 2024年，8，6 066201。

[32] J.-y. Zhang, M. Ming, J.-h. Wang, D.-m. Huang, H. Gao, Y.-x. Chu, B.-x. Fu, H. Q. Xu, J.-j. Zhang, 《应用物理快报》2024年，125，12，122106。[33] K. Eberl, W. Wegscheider，第3卷，595。North-Holland，阿姆斯特丹，ISBN 978-0-444-88835-8，1994年。[34] O. C. Ernst, D. Uebel, R. Brendler, K. Kraushaar, M. Steudel, J. Acker, E. Kroke, 《分子》2024年，29，17，4222。[35] J. P. Dismukes, L. Ekstrom, R. J. Paff, 《物理化学杂志》。[36] Y. Chen, J. Washburn, 《物理评论快报》1996年，77，19。[37] A. Rastelli, H. von Känel, 《表面科学》2002年，515，2，L493。[38] K.-P. Gradwohl, L. Cvitkovich, C.-H. Lu, S. Koelling, M. Oezkent, Y. Liu, D. Waldhör, T. Grasser, Y.-M. Niquet, M. Albrecht, C. Richter, O. Moutanabbir, J. Martin, 《纳米快报》2025年，25，11，4204。[39] L. F. Peña, J. C. Koepke, J. H. Dycus, A. Mounce, A. D. Baczewski, N. T. Jacobson, E. Bussmann, 《npj量子信息》2024年，10，1，33。[40] D. Degli Esposti, L. E. A. Stehouwer, Ö. Gül, N. Samkharadze, C. Déprez, M. Meyer, I. N. Meijer, L. Tryputen, S. Karwal, M. Botifoll, J. Arbiol, S. V. Amitonov, L. M. K. Vandersypen, A. Sammak, M. Veldhorst, G. Scappucci, 《npj量子信息》2024年，10，1，32。[41] S. Koelling, L. E. A. Stehouwer, B. Paquelet Wuetz, G. Scappucci, O. Moutanabbir, 《先进材料界面》2023年，10，3，2201189。[42] B. Paquelet Wuetz, M. P. Losert, S. Koelling, L. E. A. Stehouwer, A.-M. J. Zwerver, S. G. J. Philips, M. T. Madzik, X. Xue, G. Zheng, M. Lodari, S. V. Amitonov, N. Samkharadze, A. Sammak, L. M. K. Vandersypen, R. Rahman, S. N. Coppersmith, O. Moutanabbir, M. Friesen, G. Scappucci，Nature Communications 2022年，13，1，7730。[43] O. Dyck, D. N. Leonard, L. F. Edge, C. A. Jackson, E. J. Pritchett, P. W. Deelman, J. D. Poplawsky, 《先进材料界面》2017年，4，21，1700622。[44] P. Bas, A. Bostel, B. Deconihout, D. Blavette, 《应用表面科学》1995年，87–88，298。[45] B. Paquelet Wuetz, M. P. Losert, S. Koelling, L. E. A. Stehouwer, A.-M. J. Zwerver, S. G. J. Philips, M. T. Madzik, X. Xue, G. Zheng, M. Lodari, S. V. Amitonov, N. Samkharadze, A. Sammak, L. M. K. Vandersypen, R. Rahman, S. N. Coppersmith, O. Moutanabbir, M. Friesen, G. Scappucci，Nature Communications 2022年，13，1，7730。[46] B. Paquelet Wuetz, M. P. Losert, S. Koelling, L. E. A. Stehouwer, A.-M. J. Zwerver, S. G. J. Philips, M. T. Madzik, X. Xue, G. Zheng, M. Lodari, S. V. Amitonov, N. Samkharadze, A. Sammak, L. M. K. Vandersypen, R. Rahman, S. N. Coppersmith, O. Moutanabbir, M. Friesen, G. Scappucci，Nature Communications 2022年，13，1，7730。[47] L. Becker, P. Storck, G. Schwalb, T. Schroeder, M. Albrecht，ECS会议摘要2024年，MA2024-02，32，2374。[48] S. Sun, Y. Sun, Z. Liu, D.-I. Lee, S. Peterson, P. Pianetta, 《应用物理快报》2006年，88，2，021903。[49] P. Ponath, A. B. Posadas, A. A. Demkov，Applied Physics Reviews 2017年，4，2，021308。[50] S. Kagawa, T. Mikawa, T. Kaneda, 《日本应用物理学杂志》1982年，21，11R，1616。[51] L. Di Gaspare, D. Sabbagh, M. De Seta, A. Sodo, S. Wirths, D. Buca, P. Zaumseil, T. Schroeder, G. Capellini，Journal of Applied Physics 2015年，117，045306。[52] S. Gan, L. Li, T. Nguyen, H. Qi, R. Hicks, M. Yang, 《表面科学》1998年，395，1，69。[53] D. Nečas, P. Klapetek, 《开放物理》2012年，10，1。[54] C. Richter，雾化，Carichte/pyxrr：首个稳定版本，Zenodo，2017年。[55] F. Secco D’Aragona, 《电化学学会志》1972年，119，7，948。[56] S. Schönert，ERC高级资助项目GEMX，2020年，欧洲研究理事会支持富集锗技术的高级资助项目。

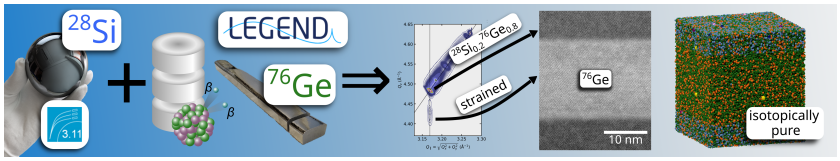


图 7：基于自旋的量子计算仍受相干时间有限的困扰，而相干时间往往受到核自旋噪声的限制。同位素纯化材料提供了一条可行的前进路径。通过使用来自 LEGEND 实验的超纯 ^{76}锗和来自阿伏伽德罗项目的 ^{28}硅，我们建立了一个量子级宿主平台。经过优化的制备工艺使这一方法能够实现新一代可扩展、低噪声的量子材料。