

Светоизлучающие структуры Si:Er, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии: фотолюминесцентная спектроскопия высокого разрешения

© Д.И. Крыжков*, Н.А. Соболев[†], Б.А. Андреев*, Д.В. Денисов, З.Ф. Красильник*, Е.И. Шек

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603600 Нижний Новгород, Россия

(Получена 26 апреля 2005 г. Принята к печати 10 мая 2005 г.)

Исследованы спектры фотолюминесценции при 77 К с разрешением до 1 см^{-1} в светоизлучающих структурах на основе слоев кремния, легированных эрбием в процессе молекулярно-лучевого эпитаксиального роста в диапазоне температур 400–700°C. В слоях, выращенных при температурах $\leq 500^\circ\text{C}$, доминируют обусловленные эрбием узкие линии, полная ширина которых на половине интенсивности не превышает 9 см^{-1} . При этом наблюдаются по крайней мере два разных центра, содержащих ионы Er^{3+} и примеси углерода. При дальнейшем повышении температуры эпитаксиального роста доминируют широкие линии ($\geq 40 \text{ см}^{-1}$), принадлежащие ионам Er^{3+} в SiO_x -преципитатах. Зависимость интегральной интенсивности фотолюминесценции Er-зависимых центров от температуры молекулярно-лучевого эпитаксиального роста представляет собой кривую с максимумом при 500°C .

1. Введение

Одним из наиболее широко используемых методов получения светоизлучающих слоев монокристаллического кремния, легированного эрбием, является метод молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Разработке и исследованию свойств светоизлучающих Si:Er-структур, выращенных методом МЛЭ, посвящено достаточно большое количество публикаций [1–7]. Существенно меньше внимания уделено идентификации оптически активных центров и влиянию технологических условий на их структуру. В работе [5] было установлено, что дополнительное легирование примесями кислорода или углерода при относительно низкой температуре эпитаксии (430°C) сопровождается изменением интенсивности и положения доминирующей линии в спектре фотолюминесценции (ФЛ) иона Er^{3+} . При этом спектры представляют собой достаточно узкие линии. Изменение положения линии и ее интенсивности авторы связывают с изменением типа и расположения примеси — активатора. В отличие от [5], в работе [2] при исследовании влияния примеси кислорода на изменения в спектрах ФЛ в слоях, выращенных при более высокой температуре (600°C), помимо увеличения интенсивности доминирующего пика авторы обнаружили изменение формы спектра. Тем не менее наблюдающуюся трансформацию спектра они также связали только с изменением расположения атомов кислорода. Однако более внимательный анализ показывает, что экспериментальный спектр (см. рис. 2 работы [2]) более похож на спектры ионов Er^{3+} в SiO_x -преципитатах в матрице кремния [8]. Анализируя качественные различия в структуре люминесцентных центров в [5] и [2], мы предположили, что эти изменения связаны с температурой роста. Основанием

для такой гипотезы послужили результаты по зависимости структуры центров ионов Ho^{3+} от температуры постимплантационных отжигов Si:Ho-образцов [9]. Из данных известных нам работ [6,7], в которых рост Si:Er методом МЛЭ проводился в широком диапазоне температур, подтвердить или опровергнуть наше предположение не представляется возможным, поскольку авторы использовали аппаратуру с недостаточным спектральным разрешением. Работа [7] также привлекает внимание, поскольку в ней обнаружено одновременное легирование в процессе МЛЭ Si:Er-слоя примесями кислорода и углерода. Цель настоящей работы заключалась в исследовании спектров ФЛ с высоким разрешением в Si:Er-слоях, выращенных методом МЛЭ при различных температурах подложки и содержащих примеси кислорода и углерода.

2. Экспериментальные условия

Si:Er-слои выращивались на установке SUPRA-32 (RIBER) в вакууме ($\sim 8 \cdot 10^{-9}$ Torr) на подложках с ориентацией поверхности (100), вырезанных из выращенного методом Чохральского кремния n -типа проводимости (n -Cz-Si) с удельным сопротивлением $\rho = 4.5 \text{ Ом} \cdot \text{см}$. Выращенный методом бестигельной зонной плавки кремний n -FZ-Si с $\rho = 2 \text{ Ом} \cdot \text{см}$ испарялся с помощью электронно-лучевого испарителя, а металлический Er — из эффузионной ячейки. Эпитаксиальный рост проводился при постоянной температуре подложки в диапазоне $T = (400\text{--}700)^\circ\text{C}$ и скорости осаждения $\sim 0.6 \text{ \AA}/\text{с}$. Концентрация атомов Er в эпитаксиальном слое, измеренная методом обратного резерфордского рассеяния, равнялась $[\text{Er}] \approx 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Измеренные методом вторичной ионной масс-спектрометрии

[†] E-mail: nick@sobolev.ioffe.rssi.ru

концентрации примесей кислорода и углерода в эпитаксиальном слое составляли $[O] \approx 2.0 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ и $[C] \approx 3.0 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, т.е. были меньше концентрации атомов эрбия, но существенно выше, чем в подложке. Толщина эпитаксиальных слоев достигала значений 1.3 мкм. Детали условий получения исследованных Si:Er-слоев приведены в [7].

Спектры ФЛ измерялись при температуре 77 К с разрешением до 1 см^{-1} с помощью фурье-спектрометра „Bomem DA3“ в диапазоне $5600\text{--}10\,000 \text{ см}^{-1}$ и Ge-приемником (обнаружительная способность не менее $5 \cdot 10^{12} \text{ см} \cdot \text{Гц}^{1/2} \cdot \text{Вт}^{-1}$). ФЛ возбуждалась излучением аргонового лазера на длине волны 514 нм и мощностью до 400 мВт.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведен спектр ФЛ образца, выращенного при температуре 500°C . В спектре доминируют три группы линий. Серия линий в области 1.54 мкм обусловлена излучательными переходами ионов Er^{3+} из первого возбужденного состояния $^4I_{13/2}$ в основное состояние $^4I_{15/2}$. Максимальная интенсивность регистрируется при $\lambda = 1.538 \text{ мкм}$. Линия с $\lambda = 1.618 \text{ мкм}$ принадлежит комплексу, содержащему атомы кислорода и углерода (так называемая P-линия) [10,11]. На однозначную идентификацию P-линии указывает наличие ее фонового повторения при $\lambda = 1.655 \text{ мкм}$. Третья линия с $\lambda = 1.127 \text{ мкм}$ является линией свободного экситона.

На рис. 2 представлены измеренные с разрешением 2 см^{-1} спектры ФЛ для образцов, выращенных при различных температурах. Увеличение температуры сопровождается качественными изменениями спектров: при $T \leq 500^\circ\text{C}$ наблюдаются узкие (полная ширина на половине интенсивности $\leq 9 \text{ см}^{-1}$) линии, а при более высоких температурах доминируют широкие ($\geq 40 \text{ см}^{-1}$)

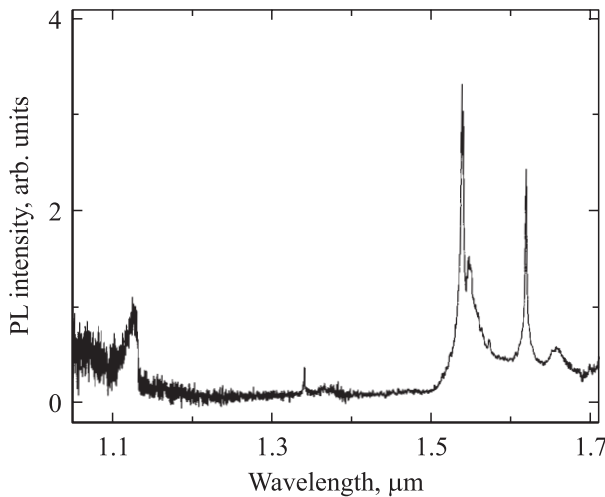


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции образца, выращенного при температуре подложки 500°C . Спектральное разрешение 2 см^{-1} .

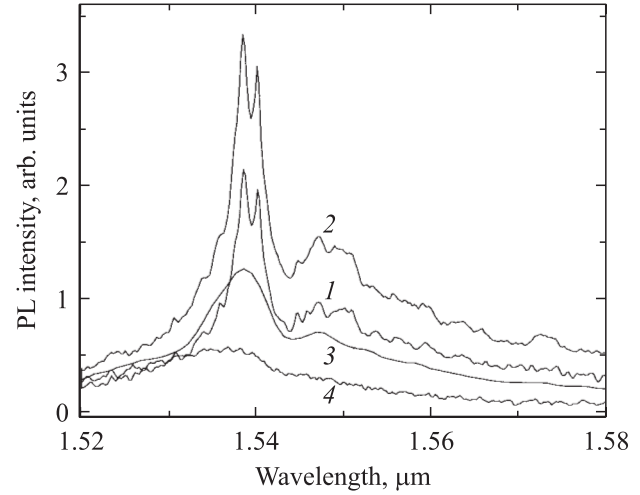


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции образцов, выращенных при температурах подложки $T, ^\circ\text{C}$: 1 — 400, 2 — 500, 3 — 600 и 4 — 700. Спектральное разрешение 2 см^{-1} .

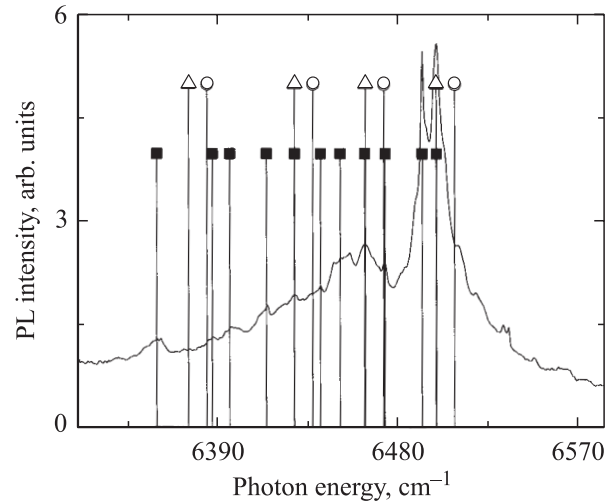


Рис. 3. Спектр фотолюминесценции образца, выращенного при температуре подложки 500°C . Спектральное разрешение 1 см^{-1} . Вертикальными линиями с квадратиками указано положение обусловленных эрбием линий в исследуемом образце, линиями с кружками — для центра ErO-1, а линиями с треугольниками — для смещенных в меньшие энергии на 9.3 см^{-1} линий центра ErO-1.

линии, подобные линиям ионов Er^{3+} в SiO_x -подобных преципитатах [8]. В спектрах низкотемпературных образцов доминируют две линии с $\lambda_1 = 1.540 \text{ мкм}$ и $\lambda_2 = 1.538 \text{ мкм}$. Можно предположить, что первая линия принадлежит эрбий-углеродному центру, поскольку линия с $\lambda = 1.540 \text{ мкм}$ также доминировала в спектрах как образцов, выращенных методом бестигельной зонной плавки с малым содержанием кислорода и имплантированных ионами углерода [12], так и Si:Er-слоях, выращенных МЛЭ при 430°C и введении в ростовую камеру углерода [5]. В то же время наблюдаемая нами

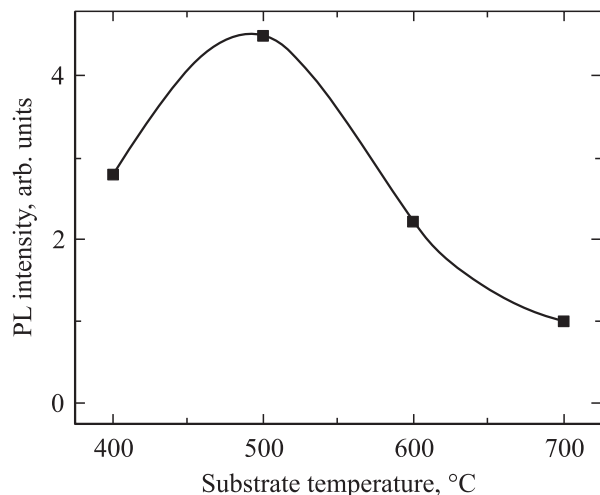


Рис. 4. Зависимость интегральной интенсивности фотолуминесценции Er-содержащих центров от температуры эпитаксиального роста.

вторая линия с $\lambda_2 = 1.538$ мкм, по-видимому, не принадлежит эрбий-кислородному центру, поскольку при введении в ростовую камеру кислорода в вышеупомянутой работе [5] в МЛЭ слоях доминировала эрбий-кислородная линия с $\lambda = 1.537$ мкм. Чтобы уточнить положение обусловленных эрбием линий и попытаться установить возможную природу второй доминирующей линии, были проведены измерения спектров ФЛ с разрешением 1 см^{-1} для низкотемпературных образцов. Положение линий в обоих образцах совпало. Спектры ФЛ образца, выращенного при 500°C , приведены на рис. 3. Для удобства сравнения с имеющимися литературными данными энергия фотона приведена в обратных сантиметрах. Вертикальными линиями с квадратиками указано положение уверенно разрешаемых в спектре линий, соответствующих переходам $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ ионов эрбия в исследуемом образце. Линиями с кружками обозначено положение линий эрбий-кислородного центра ErO-1 [13]. Доминирующими линиями центра ErO-1 являются 6508 , 6472 и 6437 см^{-1} , остальные слабее и могут быть не видны. Если сдвинуть линии центра ErO-1 на 9.3 см^{-1} (линии с треугольниками), то первые три линии совпадают с наблюдаемыми в наших образцах линиями 6499 , 6463 и 6428 см^{-1} . Кроме того, соотношение интенсивностей этих линий соответствует соотношению интенсивности линий для центра ErO-1. Такой эффект можно объяснить химическим сдвигом при замене в центре ErO-1 атомов кислорода атомами углерода. Остальные связанные с эрбием линии принадлежат другим, пока не идентифицированным центрам.

На рис. 4 приведена зависимость интегральной интенсивности ФЛ Er-содержащих центров от температуры эпитаксиального роста. Рост интенсивности ФЛ с температурой естественно связать с увеличением скорости квазихимических реакций ионов Er с примеся-

ми — активаторами на поверхности растущего слоя. Уменьшение интегральной интенсивности при температурах $\geq 600^\circ\text{C}$, по-видимому, связано с изменением типа доминирующих квазихимических реакций, на что указывает появление широких линий в результате изменения ближайшего окружения ионов Er^{3+} (см. рис. 2). Интересно отметить, что в [6] интенсивность электролюминесценции ионов эрбия возрастает при увеличении температуры МЛЭ роста до 600°C , а затем резко падает. Увеличение интенсивности авторы связывают с ростом скорости квазихимических реакций, а падение — с образованием фазы силицида эрбия. К сожалению, данных по трансформации спектров Er-зависимых линий в [6] не приводится.

4. Заключение

Таким образом, в слоях Si:Er обнаружено образование двух типов излучающих центров с узкими и широкими линиями ФЛ в зависимости от температуры МЛЭ, вызывающей изменение ближайшего окружения ионов Er^{3+} .

Работа частично поддержана INTAS (грант № 2001-0194), Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 04-02-16935) и Отделением физических наук РАН в рамках научной программы „Новые материалы и структуры“.

Список литературы

- [1] H. Efeoglu, J.H. Evans, T.E. Jackman, B. Hamilton, D.C. Houghton, J.M. Langer, A.R. Peaker, D. Perovic, I. Poole, N. Ravel, P. Hemment, C.W. Chen. *Semicond. Sci. Technol.*, **8**, 236 (1993).
- [2] R. Serna, J.H. Shin, M. Lohmeier, E. Vlieg, A. Polman, P.F.A. Alkemade. *J. Appl. Phys.*, **79**, 2658 (1996).
- [3] J. Stimmer, A. Reittinger, J.F. Nutzel, G. Absreiter, H.P. Holzbrechter, Ch. Buchal. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 3290 (1996).
- [4] W.-X. Ni, K.B. Joelsson, C.-X. Du, I.A. Buyanova, G. Pozina, W.M. Chen, G.V. Hansson, B. Monemar, J. Cardenas, B.G. Svensson. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 3383 (1997).
- [5] M. Markmann, E. Neufeld, A. Sticht, K. Brunner, G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 2584 (1999).
- [6] C.-X. Du, W.-X. Ni, K.B. Joelsson, F. Duteil, G.V. Hansson. *Opt. Mater.*, **14**, 259 (2000).
- [7] Н.А. Соболев, Д.В. Денисов, А.М. Емельянов, Е.И. Шек, Б.Я. Бер, А.П. Коварский, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков, В.М. Устинов, Г.Э. Цырлин, Т.В. Котерева. *ФТТ*, **47**, 108 (2005).
- [8] W. Jantsch, S. Lanzertorfer, L. Palmethofer, M. Stepikhova, H. Preier. *J. Luminesc.*, **80**, 9 (1999).
- [9] N.A. Sobolev, A.M. Emel'yanov, Yu.A. Nikolaev, B.A. Andreev, Z.F. Krasil'nik. *Mater. Sci. Eng. B*, **81**, 176 (2001).
- [10] N.S. Minaev, A.V. Mudryi. *Phys. Status Solidi A*, **68**, 561 (1981).
- [11] G. Davies. *Phys. Reports*, **176**, 176 (1989).
- [12] F. Priolo, S. Coffa, G. Franzo, C. Spinella, A. Carnera, B. Bellany. *J. Appl. Phys.*, **74**, 4936 (1993).

- [13] H. Przybylinska, W. Jantsch, Yu. Suprun-Belevich, M. Stepi-khova, L. Palmetshofer, G. Hendorfer, A. Kozanecki, R.J. Wil-son, B.J. Sealy. Phys. Rev. B, **54**, 2532 (1996).

Редактор Л.В. Беляков

MBE-grown Si:Er light-emitting structures: photoluminescence spectroscopy of high resolution

D.I. Kryzhkov, N.A. Sobolev, B.A. Andreev*,
D.V. Denisov, Z.F. Krasilnik*, E.I. Shek*

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
603095 Nizhnii Novgorod, Russia

Abstract Photoluminescence (PL) spectra in light-emitting structures based on molecular beam epitaxy (MBE) erbium-doped silicon layers grown in a temperature range $(400-700)^\circ\text{C}$ have been studied at 77 K with a resolution down to 1 cm^{-1} . The Er-related narrow lines with a full width at half intensity not higher 9 cm^{-1} dominate in the layers grown at temperatures $\leq 500^\circ\text{C}$. In this case two different centers containing Er^{3+} ions and carbon impurity are observed at least. The wide ($\geq 40\text{ cm}^{-1}$) lines possessed by Er^{3+} ions in SiO_x precipitates dominate at higher temperatures of epitaxial growth. A dependence of an integrated intensity of Er-related center PL on MBE growth temperature is a curve with maximum at 500°C .