Влияние параметров Ge(Si)/Si(001) самоформирующихся островков на их электролюминесценцию при комнатной температуре

© Д.Н. Лобанов[¶], А.В. Новиков, К.Е. Кудрявцев, Д.В. Шенгуров, Ю.Н. Дроздов, А.Н. Яблонский, В.Б. Шмагин, З.Ф. Красильник, Н.Д. Захаров^{*}, Р. Werner^{*}

Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 Нижний Новгород, Россия * Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, 06120 Halle/Saale, Germany

(Получена 2 июня 2008 г. Принята к печати 20 июня 2008 г.)

Выполнены исследования электролюминесценции многослойных p-i-n-структур с самоформирующимися Ge(Si)/Si(001)-островками. Обнаружено, что структуры с островками, выращенными при 600°С, обладают наибольшей интенсивностью сигнала электролюминесценции при комнатной температуре в области длин волн 1.3–1.55 мкм. Отжиг структур с Ge(Si)-островками приводит к увеличению интенсивности сигнала ЭЛ при низких температурах, но ухудшает температурную стабильность этого сигнала, что связывается с дополнительной диффузией Si в островки во время отжига. Обнаруженный существенный рост интенсивности сигнала электролюминесценции с увеличением толщины разделительного Si-слоя связывается с уменьшением упругих напряжений в структуре с увеличением толщины этого слоя. Наибольшее значение внешней квантовой эффективности ЭЛ в области длин волн 1.3–1.55 мкм, полученное в исследованных структурах, при комнатной температуре составило 0.01%.

PACS: 73.40.Lq, 78.55.-m, 78.60.Fi, 78.67.Hc

1. Введение

Одной их основных проблем, стоящих на пути создания светоизлучающих структур на основе кремния, является низкая квантовая эффективность излучательной рекомбинации носителей заряда в нем. В настоящее время можно выделить два пути увеличения эффективности излучательной рекомбинации в структурах на основе кремния. Первый — это улучшение качества структур за счет уменьшения концентрации центров безызлучательной рекомбинации носителей заряда в них [1], а второй — пространственная локализация носителей заряда в малой области структуры [2,3]. В структурах с Ge(Si) самоформирующимися островками за счет локализации носителей заряда в бездефектных островках [4,5] возможно использование преимуществ обоих этих путей. Важной особенностью приборов на основе структур с Ge(Si)-островками является также возможность их работы в области длин волн 1.3-1.55 мкм, в которой работают современные оптоволоконные линии связи. Объемный кремний в этой области длин волн прозрачен, что позволяет использовать волноводы на его основе и открывает перспективу интеграции оптических и электронных компонентов на одной кремниевой подложке. В последние годы об успехах по наблюдению электролюминесценции (ЭЛ) при комнатной температуре от структур с Ge(SI)-островками сообщалось различными группами [6-9]. Лучшие результаты в области формирования светоизлучающих диодных структур с Ge(Si)-островками, излучающими в области длин волн 1.3-1.9 мкм, были продемонстрированы в работе [10],

в которой значение внешней квантовой эффективности ЭЛ при комнатной температуре составило ~ 0.04%.

Проведенные ранее исследования фотолюминесценции (ФЛ) структур с Ge(Si)-островками показали сильную зависимость спектральных характеристик интенсивности и температурного гашения ФЛ островков от размеров, формы, состава и поверхностной плотности [11–14]. Все эти параметры должны оказывать также существенное влияние и на сигнал ЭЛ от Ge(Si)-островков. Однако влияние параметров Ge(Si)-островков на сигнал ЭЛ от них в настоящее время исследовано недостаточно.

Настоящая работа посвящена исследованию влияния параметров Ge(Si)/Si(001) самоформирующихся островков в многослойных структурах на спектральные характеристики, эффективность и температурное гашение сигнала ЭЛ от островков. Варьирование параметров Ge(Si)-островков осуществлялось за счет использования различных температур роста, толщин Si разделительных слоев между соседними слоями Ge(Si)-островков, а также постростового термического отжига структур.

2. Методика эксперимента

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии из твердых источников на подложках Si(001) *p*-типа, легированных бором до концентрации $7 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Рост структур начинался с осаждения контактного p^+ -Si-слоя толщиной 200 нм, легированного бором до концентрации $\sim 10^{19}$ см⁻³. Затем осаждался слой нелегированного Si толщиной 50 нм, на котором формировалась решетка, состоящая из 20 слоев Ge(Si) самоформирующихся островков, разделен-

[¶] E-mail: dima@ipm.sci-nnov.ru

ных слоями нелегированного Si. Температура роста $(T_{\rm gr})$ решетки с островками варьировалась в диапазоне $T_{\rm gr} = 550-650^{\circ}$ C, а толщина разделительных Si-слоев — в диапазоне $d_{\rm Si} = 10-32$ нм. Подробнее формирование решетки с островками описано в [15]. Рост структур заканчивался осаждением слоя нелегированного Si толщиной 50 нм и контактного n^+ -Si-слоя толщиной 200 нм, легированного сурьмой до концентрации $2 \cdot 10^{18}$ см⁻³.

Часть выращенных структур подвергалась термическому отжигу в атмосфере азота в течение 1 мин при температурах 650 и 700°С. Рентгенодифракционные (РД) исследования были выполнены на дифрактометре ДРОН-4. Исследования структур методами просвечивающей электронной микроскопии были выполнены на микроскопах Philips CM20 и JEM 4010 при ускоряющих напряжениях 200 и 400 кВ соответственно. Для измерения ЭЛ на поверхности образцов со стороны структуры формировался омический контакт Au/Ti диаметром 0.5 мм. Второй омический контакт формировался путем нанесения сплошной пленки Al на обратную сторону подложки. Структуры с контактами раскалывались на отдельные кусочки (чипы) размером 2 × 2 мм. Измерения спектров ЭЛ проводились на чипах в импульсном режиме, чтобы избежать перегрева образцов. Длительность импульсов составляла 4 мс, период повторения — 25 мс. Спектры ЭЛ регистрировались с помощью охлаждаемого жидким азотом Ge:Аu-фотоприемника. Мощность излучения измерялась в непрерывном режиме с помощью измерителя мощности PD300-IRG на основе InGaAs-приемника, работаюшего в диапазоне длин волн 800-1700 нм. Непосредственно измерялась мощность, излучаемая в направлении по нормали к поверхности структуры в телесный угол, ограниченный апертурой измерителя мощности. Полная излучаемая мощность находилась пересчетом в полный телесный угол исходя из условия изотропности излучения. Близость диаграммы направленности излучения к изотропной была подтверждена экспериментально. Для оценки внешней квантовой эффективности (η) использовалась формула [16]

$$\eta = \frac{P \, e}{I \, h \, \nu},\tag{1}$$

где P — излучаемая мощность, e — заряд электрона, I — ток через структуру, h — постоянная Планка, ν — частота фотона.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Исследования спектров ЭЛ показали, что во всех p-i-n-структурах с Ge(Si)-островками при комнатной температуре наблюдался сигнал ЭЛ от островков в области энергий 0.75–1.0 эВ ($\lambda \approx 1.25-1.65$ мкм) (рис. 1). Было обнаружено, что если при низких температурах измерения (~ 77 K) интенсивность сигнала ЭЛ от островков, выращенных при различных температурах, примерно одинакова (рис. 1, *a*), то при комнатной температуре



Рис. 1. Спектры ЭЛ p-i-n-диодных структур с Ge(Si)-островками, выращенных при 550 (1), 600 (2) и 650°С (3). Спектры измерены при температурах 77 (*a*) и 300 К (*b*). Плотность тока накачки для всех структур — 5 А/см².

островки, выращенные при $T_{\rm gr} = 600^{\circ} {\rm C}$, демонстрируют наибольшую интенсивность сигнала ЭЛ (рис. 1, b). Ранее [11] было обнаружено, что куполообразные (dome) островки, выращенные при $T_{\rm gr} = 600^{\circ} {\rm C}$, обладают наибольшей интенсивностью сигнала ФЛ при комнатной температуре по сравнению с сигналом ФЛ от островков, выращенных при других температурах роста, что связывается с наилучшей локализацией дырок в островках, выращенных именно при $T_{\rm gr} = 600^{\circ}$ С. Это вызвано тем, что, с одной стороны, увеличение температуры роста выше 600°С приводит к увеличению диффузии кремния в островки [17,18]. Согласно рентгеноструктурному анализу, в исследованных структурах с $d_{Si} = 25$ нм среднее содержание Ge в островках уменьшается с $x = 45 \pm 3$ до $x = 37 \pm 3\%$ при увеличении $T_{\rm gr}$ с 600 до 650°С. Рост доли Si в островках приводит к уменьшению разрыва в валентной зоне на гетерогранице кремния с Ge(Si)-островком, уменьшению глубины потенциальной ямы для дырок в островке и, как следствие, к ухудшению их пространственной локализации.

С другой стороны, снижение температуры роста с 600 до 550°С приводит к качественному изменению в росте самоформирующихся Ge(Si)-островков [19,20]. В данном диапазоне температур происходит изменение типа островков, доминирующих на поверхности, с куполообразных наноостровков на пиармидальные (hut), которое сопровождается резким уменьшением средней высоты островков [20]. Последнее обстоятельство, вследствие квантово-размерных эффектов, вызывает выталкивание энергетического уровня дырок в островке к краю валентной зоны кремния, что также приводит к ухудшению локализации дырок в островках. На более слабую локализацию дырок в структурах с hut-островками указывает появление сигнала ЭЛ от Si при комнатной температуре в этих структурах (рис. 1, b). Еще одним фактором, который может приводить к падению интенсивности сигнала ЭЛ от островков при понижении температуры роста, является рост концентрации точечных дефектов в структурах, выращенных при низких температурах [21]. Рост концентрации точечных дефектов приводит к увеличению концентрации центров безызлучательной рекомбинации носителей заряда. Таким образом, в исследованных структурах наилучшая пространственная локализация дырок реализуется в Ge(Si) куполообразных "dome" островках, выращенных при 600°С. Это приводит к малому температурному гашению и наибольшей интенсивности при комнатной температуре сигнала ЭЛ от островков, выращенных при этой температуре.

Увеличение интенсивности сигнала ЭЛ от Si(Ge)-островков может быть достигнуто за счет снижения концентрации центров безызлучательной рекомбинации при термическом отжиге структур. Ранее было показано [15], что в результате отжига при тех же условиях, что и в данной работе, интенсивность сигнала ФЛ от островков при низких (77 К) температурах измерения растет с ростом температуры отжига. Однако при этом увеличивалось температурное гашение сигнала ФЛ от островков [15]. Проведенные исследования показали, что аналогичное поведение от температуры отжига наблюдается и для сигнала ЭЛ от островков: с увеличением температуры отжига происходит как увеличение интенсивности сигнала ЭЛ при низких температурах измерения, так и рост его температурного гашения. Обнаруженное увеличение температурного гашения сигналов ФЛ и ЭЛ с ростом температуры отжига связывается с ухудшением локализации дырок в островках в результате дополнительной диффузии Si в островки во время отжига [15]. Подтверждением роста доли Si в островках является сдвиг положения максимумов сигналов ФЛ и ЭЛ от островков в сторону бо́льших энергий после отжига [15] (рис. 2). Необходимо отметить, что, несмотря на увеличение температурного гашения сигнала ЭЛ от островков в структурах, отожженных при умеренных температурах (650°С), интенсивность сигнала ЭЛ от островков при комнатной температуре несколько увеличивается (рис. 2). Следовательно, существует оптимальный режим отжига структур с Ge(Si)-островками, который бы, с од-



Рис. 2. Спектры ЭЛ диодной структуры с Ge(Si)-островками, выращенной при 600°С, до отжига (1) и после отжига при 650 (2) и 700°С (3). Спектры измерены при 300 К.

ной стороны, уменьшал количество дефектов в структуре, а с другой — не оказывал бы значительного влияния на параметры островков (в частности — состав) и не приводил бы к существенному ухудшению локализации дырок в островках.

В многослойных структурах с самоформирующимися островками еще одним параметром, оказывающим существенное влияние на параметры самих островков и их оптические свойства, является толщина Si разделительного слоя между соседними слоями Ge(Si)-островков [13,22]. Варьирование толщины Si разделительного слоя между соседними слоями с Ge(Si)-островками, выращенными при 600°С, показало, что при увеличении толщины этого слоя с 25 до 32 нм интенсивность сигнала ЭЛ от островков и внешняя квантовая эффективность излучательной рекомбинации возрастают в 5 раз (рис. 3). Рост интенсивности сигнала ЭЛ и квантовой эффективности излучательной рекомбинации, наблюдаемый при росте толщины разделительного Si слоя, связывается с уменьшением упругих напряжений в структуре с увеличением толщины этого слоя. Уменьшение упругих напряжений, во-первых, приводит к снижению стимулированной ими диффузии Si в островки и, как следствие, к росту доли Ge в островках [22]. Рост доли Ge в островках с увеличением d_{Si} подтверждается рентгеноструктурным анализом, согласно которому при увеличении d_{Si} с 25 до 32 нм среднее содержание Ge в островках увеличивается с 45 ± 3 до $51 \pm 3\%$. Рост доли Ge в островках с увеличением толщины Si разделительного слоя подтверждается также сдвигом максимума сигнала ЭЛ от островков в сторону меньших энергий (рис. 3). Во-вторых, уменьшение упругих напряжений приводит к уменьшению плотности дислокаций несоответствия в структуре, что также ведет к уменьшению числа каналов безызлучательной рекомбинации и росту интенсивности сигнала ЭЛ. Низкая плотность дефектов

кристаллической решетки в структуре с толстыми Si разделительными слоями подтверждается исследованиями, проведенными методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Эти исследования также позволили установить, что даже в структуре с $d_{Si} = 32$ нм между островками соседних слоев наблюдается сильная вертикальная корреляция (рис. 4). Это говорит о том, что упругие напряжения от предыдущих слоев с островками оказывают влияние на формирование островков в последующих слоях. Кроме этого, из ПЭМ-снимка видно, что размеры островков увеличиваются с ростом номера слоя (рис. 4). Увеличение размеров островков в верхних слоях многослойной структуры может быть вызвано увеличением доли Si в островках вследствие накопления упругих напряжений [22]. Таким образом,



Рис. 3. Спектры ЭЛ диодных структур с Ge(Si)-островками, выращенных при 600°С, с толщиной Si разделительного слоя 25 (1) и 32 нм (2). Спектры измерены при температуре 300 К.



Рис. 4. ПЭМ снимок части диодной многослойной структуры с Ge(Si)-островками, выращенными при 600°С и разделенными Si-слоями толщиной 32 нм.



Рис. 5. Зависимость интегральной мощности ЭЛ Ge(Si)-островков от плотности тока накачки для структуры с островками, выращенными при 600°С и разделенными Si-слоями толщиной 32 нм.

можно ожидать, что дальнейшее (более 32 нм) увеличение толщины Si разделительных слоев приведет к увеличению доли Ge в островках и, как следствие, к росту квантовой эффективности излучательной рекомбинации в многослойных структурах с Ge(Si)-островками.

Измерения интегральной мощности ЭЛ от Ge(Si)-островков показали, что в исследованном диапазоне токов она сверхлинейно зависит от плотности тока накачки (рис. 5). Это означает, что, согласно выражению (1), с увеличением плотности тока накачки квантовая эффективность излучательной рекомбинации в исследованных структурах возрастает. Наибольшее значение внешней квантовой эффективности ЭЛ в исследованных структурах было получено для структуры, выращенной при 600°С, в которой слои Ge(Si)-островков были разделены толстыми ($d_{Si} = 32 \text{ нм}$) Si-слоями. Значение внешней квантовой эффективности при комнатной температуре для этой структуры составило ~ 0.01%. При этом интегральная мощность ЭЛ в области длин волн 1.3-1.55 мкм для плотности тока накачки в 5 A/см² составила ~ 3 мкВт.

4. Заключение

В работе представлены результаты исследования влияния условий роста, параметров структур и температуры отжига на ЭЛ многослойных p-i-n-диодных Ge(Si)/Si(001)-структур с самоформирующимися островками. Обнаружено, что островки, выращенные при 600°С, обладают наибольшей интенсивностью сигнала ЭЛ при комнатной температуре. Данный результат связывается с наилучшей локализацией дырок в островках, выращенных при этой температуре. Отжиг структур с Ge(Si)-островками приводит к увеличению интенсивности сигнала ЭЛ при низких температурах, но ухудшает его температурную стабильность, что вызвано дополнительной диффузией Si в островки во время отжига. Рост интенсивности сигнала ЭЛ с увеличением толщины разделительного Si-слоя связывается с уменьшением упругих напряжений в структуре с увеличением толщины этого слоя. Наибольшее значение внешней квантовой эффективности ЭЛ в области длин волн 1.3–1.55 мкм, полученное в результате оптимизации параметров исследованных структур, при комнатной температуре составило ~ 0.01%.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского образования (проект РНП.2.1.1.1370), Фонда содействия отечественной науке и программ РАН.

Список литературы

- M.A. Green, J. Zhao, A. Wang, P.J. Reece, M. Gal. Lett. Nature, 412, 805 (2001).
- [2] W.L. Ng, M.A. Lourenco, R.M. Gwilliam, S. Ledain, G. Shao, K.P. Homewood. Nature, 410, 192 (2001).
- [3] V. Kveder, M. Badylevich, E. Steinman, A. Izotov, M. Seibt, W. Schröter. Appl. Phys. Lett., 84, 2106 (2004).
- [4] O.G. Schmidt, K. Eberl, Y. Rau. Phys. Rev. B, 62, 16715 (2000).
- [5] А.И. Якимов, А.В. Двуреченский, А.А. Блошкин, А.В. Ненашев. Письма ЖЭТФ, 83, 189 (2006).
- [6] W.-H. Chang, A.T. Chou, W.Y. Chen, H.S. Chang, T.M. Hsu, Z. Pei, P.S. Chen, S.W. Lee, L.S. Lai, S.C. Lu, M.-J. Tsai. Appl. Phys. Lett., 83, 2958 (2003).
- [7] M. Stoffel, U. Denker, O.G. Schmidt. Appl. Phys. Lett., 82, 3232 (2003).
- [8] T. Brunhes, P. Boucaud, S. Sauvage, F. Aniel, J.-M. Lourtioz, C. Hernandez, Y. Campidelli, O. Kermarrec, D. Bensahel, G. Faini, I. Sagnes. Appl. Phys. Lett., 77, 1822 (2000).
- [9] M.H. Liao, C.-Y. Yu, T.-H. Guo, C.-H. Lin, C.W. Liu. IEEE Electron. Dev. Lett., 27, 252 (2006).
- [10] V.G. Talalaev, G.E. Cirlin, A.A. Tonkikh, N.D. Zakharov, P. Werner. Phys. Status Solidi A, 198, R4 (2003).
- [11] Н.В. Востоков, Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник, Д.Н. Лобанов, А.В. Новиков, А.Н. Яблонский. Письма ЖЭТФ, 76, 425 (2002).
- [12] U. Denker, M. Stoffel, O.G. Schmidt, H. Sigg. Appl. Phys. Lett., 82, 454 (2003).
- [13] W.-H. Chang, W.-Y. Chen, A.-T. Chou, T.-M. Hsu, P.-S. Chen, Z. Pei, L.-S. Lai. J. Appl. Phys., 93, 4999 (2003).
- [14] V. Yam, Vinh Le Thanh, Y. Zheng, P. Boucaud, D. Bouchier. Phys. Rev. B, 63, 033 313 (2001).
- [15] Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник, К.Е. Кудрявцев, Д.Н. Лобанов, А.В. Новиков, М.В. Шалеев, Д.В. Шенгуров, В.Б. Шмагин, А.Н. Яблонский. ФТП, 42 (3), 291 (2008).
- [16] Р.Дж. Киес, П.В. Крузе, Э.Г. Патли, Д. Лонг, Г.Р. Цвиккер, А.Ф Милтон, М.К. Тейч. Фотоприемники видимого и ИК диапазонов (М., Радио и связь, 1985) с. 98. [Пер. с англ.: R.J. Keyes, P.W. Kruse, D. Long, A.F. Milton, E.H. Putley, M.C. Teich, H.R. Zwicker. Optical and infrared detectors, ed. by R.J. Keyes (Springer-Verlag, Berlin; Heidelberg; N.Y., Topics in applied physics, 1980) v. 19].
- [17] M. Floyd, Y. Zhang, K.P. Driver, J. Drucker, P.A. Crozier, DJ. Smith. Appl. Phys. Lett., 82, 1473 (2003).

- [18] G. Capellini, M. De Seta, F. Evangelisti. Appl. Phys. Lett., 78, 303 (2001).
- [19] O.G. Schmidt, C. Lange, K. Eberl. Phys. Status Solidi B, 215, 319 (1999).
- [20] A.V. Novikov, M.V. Shaleev, D.N. Lobanov, A.N. Yablonsky, N.V. Vostokov, Z.F. Krasilnik. Physica E, 23, 416 (2004).
- [21] I.A. Buyanova, W.M. Chen, G. Pozina, B. Monemar, W.-X. Ni, G.V. Hansson. Appl. Phys. Lett., 71, 3676 (1997).
- [22] M. De Seta, G. Capellini, F. Evangelisti, C. Ferrari, L. Lazzarini, G. Salviati, R.W. Peng, S.S. Jiang. J. Appl. Phys., 102, 043 518 (2007).

Редактор Л.В. Беляков

Effect of Ge(Si)/Si(001) self-assembled islands parameters on their electroluminescence at room temperature

D.N. Lobanov, A.V. Novikov, K.E. Kudryavtsev, D.V. Shengurov, Yu.N. Drozdov, A.N. Yablonskiy, V.B. Shmagin, Z.F. Krasilnik, N.D. Zakharov*, P. Werner*

Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia * Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, 06120 Halle/Saale, Germany

Abstract The study of electroluminescence from multilayer p-i-n-structures with self-assembled Ge(Si)/Si(001) islands has been performed. The highest intensity of the room temperature electroluminescence in the wavelength range $1.3-1.55\,\mu m$ has been observed for the islands grown at 600°C. Annealing of the structures with Ge(Si) islands leads to an increase of the electroluminescence signal at low temperatures but makes worse the temperature stability of the signal. This fact is caused by an additional Si diffusion into the islands during the annealing process. The growth of the electroluminescence signal with the increase of Si space layer thickness is associated with a decrease of elastic strain in the structure with the increase of this layer thickness. The highest external quantum efficiency of electroluminescence from the islands in the wavelength range $1.3-1.55\,\mu m$, obtained from the structures under investigation, has reached a 0.01% value at room temperature.