

05;06;07;12

## Корреляция люминесцентных свойств с изменением характера структурной организации в сверхрешетках AlGaIn/GaN после имплантации ионов эрбия и отжига

© Е.Е. Баранов,<sup>1</sup> А.М. Емельянов,<sup>2</sup> В.В. Лундин,<sup>2</sup> В.Н. Петров,<sup>2</sup> В.И. Сахаров,<sup>2</sup> И.Т. Серенков,<sup>2</sup> Н.А. Соболев,<sup>2</sup> А.Н. Титков,<sup>2</sup> Е.И. Шек,<sup>2</sup> Н.М. Шмидт<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, 117911 Москва, Россия

<sup>2</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: nick@sobolev.ioffe.rssi.ru

(Поступило в Редакцию 28 декабря 2005 г.)

Проведены сравнительные исследования эволюции характера структурной организации (ХСО) сверхрешеток (СР) AlGaIn/GaN, выращенных методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений, и их фотолюминесцентных (ФЛ) свойств после имплантации ионов эрбия с энергией 1 MeV, дозой  $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  и отжига. Характер структурной организации оценивался количественно с помощью параметра  $\Delta$  (степень нарушения локальной симметрии), который определялся путем обработки с помощью мультифрактального анализа данных исследования морфологии поверхности структур методами атомно-силовой микроскопии. Показано, что имплантация сопровождается не только выделением Ga на поверхности, но и изменением ХСО, проявляющимся в появлении более мелкой по сравнению с исходной зернистой структуры и в разупорядочении, а также в росте  $\Delta$ . С ростом температуры отжига от 700 до 800°C наблюдаются снижение  $\Delta$ , свидетельствующее об улучшении ХСО, и увеличение интенсивности доминирующего пика ( $1.542 \mu\text{m}$ ) ФЛ ионов  $\text{Er}^{3+}$ . Дальнейшее увеличение температуры отжига до 1050°C сопровождается ухудшением ХСО, укрупнением доменов, формированием пустот глубиной до 100–200 nm и падением интенсивности ФЛ. На образование пустот в процессе высокотемпературного отжига также указывают данные метода рассеяния протонов с энергией 230 keV. Таким образом, установлено, что улучшение характера структурной организации СР способствует активации эрбия и росту интенсивности люминесценции ионов эрбия.

PACS: 81.05.-t, 78.55.-m

### Введение

Недавно экспериментально был обнаружен эффект увеличения в несколько раз интенсивности фотолюминесценции ионов эрбия ( $\text{Er}^{3+}$ ) в сверхрешетке (СР) AlGaIn/GaN по сравнению с люминесценцией в слое GaN [1]. Однако он слабее ранее предсказанного в теоретических работах Г.Г. Зегри и В.Ф. Мастера [2,3]. Причины расхождения теории и эксперимента в настоящее время не выяснены. Исследования последних лет показали, что характер структурной организации нитридов III группы играет важную роль в формировании многих электрических и оптических свойств этих материалов, в частности такого параметра, как квантовая эффективность светодиодов [4,5]. При решении проблемы получения высокой эффективности люминесценции ионов эрбия влияние этого фактора не рассматривалось. В данной работе исследуется эволюция характера структурной организации СР AlGaIn/GaN и люминесцентных свойств после имплантации ионов эрбия и отжига.

### Экспериментальная часть

Сверхрешетки  $\text{Al}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{N}/\text{GaN}$  (толщина слоев 5 nm, 148 периодов) были выращены методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений

(MOCVD) на модифицированной установке Epiquip VP-50 RP с горизонтальным кварцевым реактором и графитовым держателем, имеющим индукционный нагрев. Рост начинался с осаждения низкотемпературного ( $T = 500^\circ\text{C}$ ) слоя зародышеобразования AlGaIn на сапфировой подложке с ориентацией (0001) с последующим эпитаксиальным ростом при  $1050^\circ\text{C}$  и давлении 200 mbar. Структуры состояли из слоя зародышеобразования AlGaIn толщиной 20 nm, буферного слоя GaN толщиной 200 nm и сверхрешетки с ямами GaN и барьерами AlGaIn одинаковой толщины. Более подробно условия эпитаксиального роста были описаны в [6]. Легирование эрбием осуществлялось методом имплантации. Для повышения интенсивности люминесценции ионов эрбия доза имплантации была увеличена в 3 раза по сравнению с [1]. Ионы эрбия с энергией 1 MeV и дозой  $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  имплантировались при комнатной температуре. Отжиги проводились последовательно при температурах 700–900 и  $1050^\circ\text{C}$  в течение 5 min в потоке аргона.

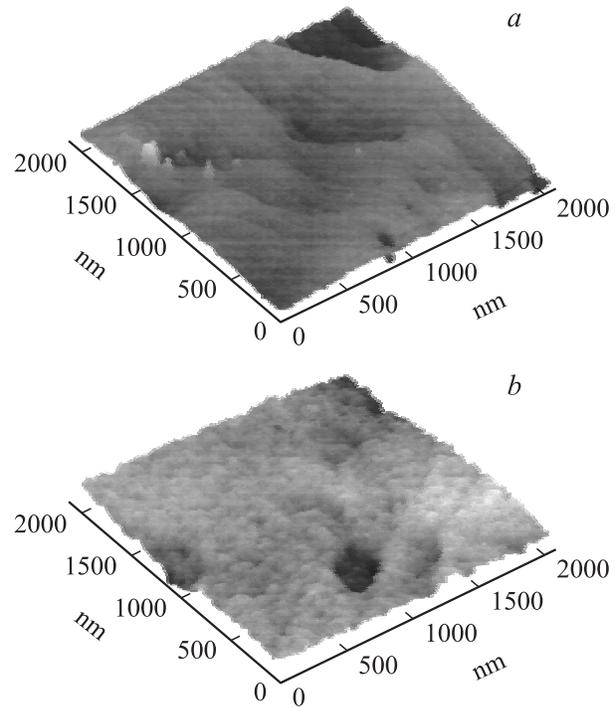
Фотолюминесценция возбуждалась излучением галогеновой лампы (с длиной волны  $\lambda > 360 \text{ nm}$ ), выделяемым полосовым фильтром из оптического стекла СЗС-24 [1]. Мощность излучения, сфокусированного линзовой системой на образце, во всех экспериментах поддерживалась постоянной и составля-

ла  $\sim 50$  мВт. Для регистрации фотолюминесценции в диапазоне  $0.95\text{--}1.65\ \mu\text{m}$  использовались монохроматор МДР-23 и InGaAs-фотоприемник, работающий при комнатной температуре. Световой поток от галогеновой лампы модулировался прерывателем с частотой 36 Hz. Импульсы фототока приемника преобразовывались в переменное напряжение, которое регистрировалось с помощью селективного вольтметра. Разрешение системы равнялось 7 nm. Характер структурной организации (ХСО) нитридов III группы определяется особенностями коалесценции доменов мозаичной структуры и их взаимодействием с прорастающими дислокациями.

Эти особенности находят отражение в рельефе поверхности. Обработка методами мультифрактального анализа цифрового множества, соответствующего изображению поверхности, полученному с помощью атомно-силовой микроскопии (АСМ), позволяла определить параметр  $\Delta$  — степень нарушения локальной симметрии. Этот параметр несет информацию об особенностях ХСО и отражает количественно степень отклонения рельефа от регулярного, вызванного разными углами наклона и разворота доменов мозаичной структуры. Описание процедуры определения этого параметра приведено в [7]. Ранее проведенные исследования показали: чем меньше  $\Delta$ , тем совершеннее структурная организация нитридов; тем больше когерентное излучение согласованных доменов, сросшихся с образованием дилатационных границ, и тем меньше количество дислокационных доменных стенок [8]. Также исследовались энергетические спектры обратного рассеяния ионов  $\text{H}^+$  с энергией 230 keV. Направление падения пучка ионов составляло  $7^\circ$  с направлением (100) в исследуемых образцах, что обеспечивало измерение спектров в „случайном“ режиме (критический угол каналирования для данных условий составлял  $\sim 2^\circ$ ). Измерялись спектры ионов, рассеянных на угол  $120^\circ$  от поверхности образцов. Выбранные экспериментальные условия позволили обнаруживать в энергетических спектрах обратнорассеянных ионов особенности, определяемые пористой структурой приповерхностных слоев исследуемых образцов. Как правило, эти особенности проявляются в виде „скоса“ переднего (высокоэнергетического) фронта спектра [9].

## Результаты и их обсуждение

Установлено, что имплантация ионов сопровождается не только выделением Ga в больших количествах на поверхности, что отмечалось в ряде работ [10,11], но и изменением ХСО в приповерхностной области СР (рис. 1). Изменение ХСО заключается в появлении более мелкой по сравнению с исходной зернистой структуры и в разупорядочении рельефа приповерхностной области СР. Серия отжига, проведенная в диапазоне  $700\text{--}1050^\circ\text{C}$  показала, что происходит эволюция ХСО в приповерхностной области СР AlGaIn/GaN, однако в отличие от элементарных полупроводников (Si и Ge) и арсенида галлия подобрать режим термообработки, полностью восстанавливающий ХСО до имплантации, не



**Рис. 1.** Изображение поверхностей сверхрешетки в атомно-силовом микроскопе до (а) и после имплантации (б). Максимальная глубина рельефа 2 и 6 nm соответственно.

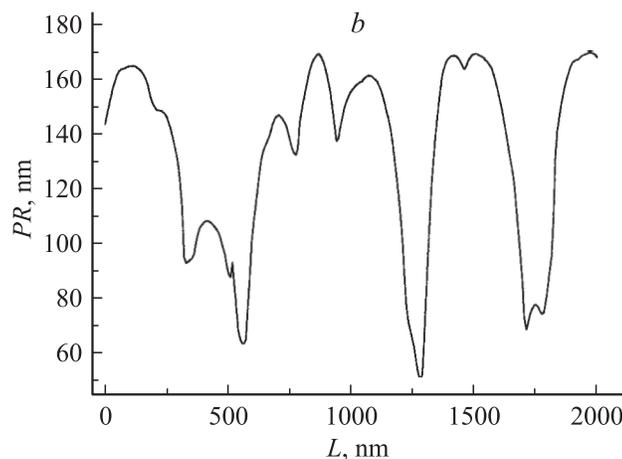
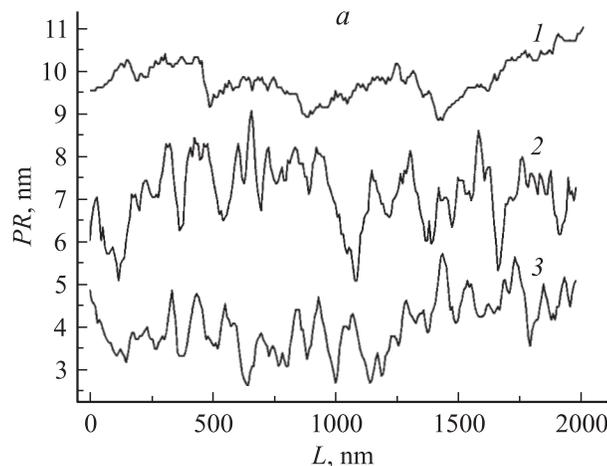
удается. Эта особенность нитридов отмечалась многими исследователями [10,11]. Несмотря на это, активировать имплантированный эрбий и получить люминесценцию на длине волны  $\sim 1.54\ \mu\text{m}$  оказалось возможным. Было выяснено, что упорядоченность ХСО играет в этом процессе достаточно важную роль. Предпринимались попытки проследить эволюцию ХСО в процессе отжига, используя традиционный метод контроля состояния поверхности из данных АСМ с помощью таких параметров, как шероховатость или среднеквадратичное отклонение (RMS). Однако в случае нерегулярного рельефа проведение количественных сравнений с помощью этих параметров затруднено, так как неизбежно сильное усреднение, кроме того, профиль шероховатости может отличаться по разным направлениям. На рис. 2, а приведены профили шероховатости  $PR$  поверхностей СР до и после имплантации и после отжига при  $800^\circ\text{C}$ . Использование мультифрактального параметра  $\Delta$  позволяет провести количественное сравнение даже в случае очень нерегулярного рельефа, так как этот параметр определяет отклонение рельефа от регулярного по всей анализируемой поверхности, а не по одному направлению. Использование этого параметра позволило провести сравнительные количественные исследования эволюции ХСО СР после имплантации ионов эрбия и отжига. В таблице представлены значения  $\Delta$  начиная с исходного, затем последовательно после имплантации и серии отжига. Видно, что значения  $\Delta$  возрастают после имплантации, затем начинают уменьшаться по мере повышения температуры отжига, достигают минимума

Значения параметра степень нарушения локальной симметрии ( $\Delta$ ) на различных стадиях постростовой обработки сверхрешетки AlGaIn/GaN

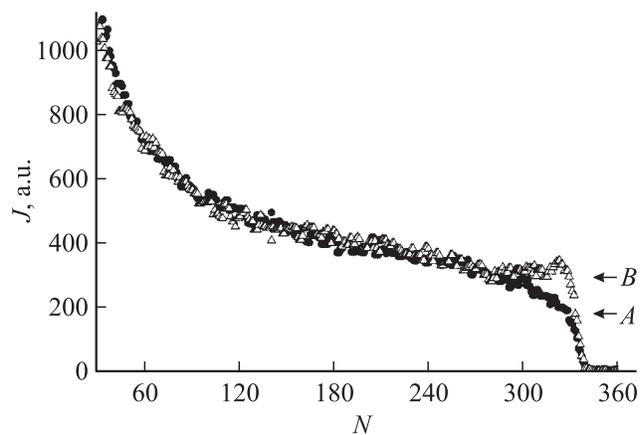
Стадия технологического процесса	$\Delta$
После выращивания	0.210
После имплантации	0.302
После отжига 700°C	0.290
После отжига 800°C	0.280
После отжига 900°C	0.285

при 800°C и снова начинают расти. При температуре 1050°C наблюдаются катастрофические изменения ХСО — формируются крупные домены, разделенные пустотами глубиной до 100–200 нм, что хорошо выявляется на профиле шероховатости (рис. 2, *b*).

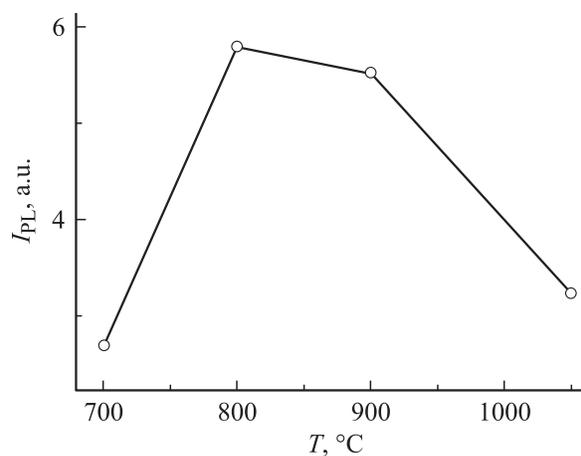
Образование пустот также подтверждено спектрами обратного рассеяния ионов  $H^+$  (рис. 3). Известно [9], что появление „скоса“ на переднем (высокоэнергетическом) фронте спектра связано с пористой структурой



**Рис. 2.** Профили шероховатости  $PR$  поверхностей сверхрешетки в атомно-силовом микроскопе: *a*) 1 — до имплантации, 2 — после имплантации, 3 — после отжига при 800°C, *b*) после отжига при 1050°C.



**Рис. 3.** Спектры обратного рассеяния ионов  $H^+$  сверхрешеток после имплантации (треугольники) и после отжига при 1050°C (кружки).  $N$  — номер канала.



**Рис. 4.** Зависимость интенсивности фотолюминесценции ионов эрбия на длине волны 1.542  $\mu\text{m}$  от температуры отжига при 300 К.

приповерхностных слоев, именно такая особенность наблюдается на спектре СР после отжига при 1050°C. На спектре СР до и после имплантации ионов эрбия наблюдается крутой передний (высокоэнергетический) фронт. Процент поверхности, не занятой порами, оценивался из отношения высоты уровня „А“ (точки, где расходятся фронты обоих спектров), к уровню „случайного“ спектра неотожженного образца — уровень „В“, и оказался равным 60%, т.е. 40% приповерхностной области образца, прошедшего отжиг, занято порами.

В спектрах фотолюминесценции всех образцов после отжига доминирует пик излучения с максимумом на длине волны 1.542  $\mu\text{m}$ , обусловленный переходами ионов  $\text{Er}^{3+}$  из первого возбужденного состояния ( $^4I_{13/2}$ ) в основное ( $^4I_{15/2}$ ). Изменение интенсивности доминирующего пика коррелирует с изменением ХСО (рис. 4, см. таблицу). Максимум интенсивности люминесценции ионов  $\text{Er}^{3+}$  наблюдается при минимальных значениях параметра  $\Delta$ , т.е. при большем структурном совершен-

стве, которое достигается после отжига при 800°С. Таким образом, установлено, что улучшение характера структурной организации СР способствует активации переходов  $f-f$  и росту интенсивности люминесценции ионов эрбия. Однако восстановить отжигами начальный ХСО СР не удается; возможно, расхождение теоретических оценок интенсивности в СР AlGaIn/GaN и эпитаксиальных слоях GaN с экспериментом во многом обусловлено этим, и дальнейшее увеличение дозы имплантации представляется не самым оптимальным способом увеличения интенсивности люминесценции ионов эрбия.

## Заключение

Увеличение интенсивности фотолюминесценции ионов эрбия хорошо коррелирует с улучшением характера структурной организации (уменьшением параметра  $\Delta$ , свидетельствующим о росте структурной упорядоченности) с ростом температуры отжига от 700 до 800°С. Дальнейшее повышение температуры сопровождается ухудшением структурной упорядоченности, укрупнением доменов, формированием пустот глубиной до 100–200 nm и падением интенсивности фотолюминесценции.

Работа частично поддержана президиумом РАН (комплексная программа научных исследований „Низкоразмерные квантовые структуры“).

## Список литературы

- [1] *Sobolev N.A., Emel'yanov A.M., Sakharov V.I.* et al. // *Physica B*. 2003. Vol. 340–342. P. 1108.
- [2] *Zegrya G.G., Masterov V.F.* // *Appl. Phys. Lett.* 1998. Vol. 73. N 23. P. 3444.
- [3] *Polkovnikov A., Zegrya G.G.* // *Phys. Rev. B*. 2001. Vol. 64. N 7. P. 1.
- [4] *Shmidt N.M., Besyulkin A.I., Kartashova A.P.* et al. // *Phys. Stat. Sol. C*. 2005. Vol. 2. N 2. P. 837.
- [5] *Aliev G., Besyul'kin A.N., Davies J.* et al. // *Phys. Stat. Sol. C*. 2002. V. 0. N 1. P. 558.
- [6] *Krestnikov I.I., Lundin W.V., Sakharov A.V.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1999. Vol. 75. N 9. P. 1192.
- [7] *Kolmakov A.G., Dunaevsky M.S., Emtsev V.V.* et al. // *Inst. Phys. Conf. Ser.* 2001. N 169. P. 341.
- [8] *Ankudinov A.V., Besyulkin A.I., Kolmakov A.G.* et al. // *Physica B*. 2003. Vol. 340–342. P. 462.
- [9] *Сресели О.М., Горячев Д.Н., Осипов В.Ю.*, и др. // *ФТП*. 2002. Т. 36. Вып. 5. С. 604.
- [10] *Hogg S.M., Pipeleers B., Swart M.* // *Appl. Phys. Lett.* 2002. Vol. 80. N 23. P. 4363.
- [11] *Mills A.I.* // *The advanced semiconductor magazine*. 2001. Vol. 11. N 5. P. 28.