06;07

## Метод спектроскопии возбуждения фотолюминесценции, модифицированный для исследования структур с самоформирующимися Ge(Si)/Si(001) наноостровками

© Н.А. Байдакова, А.В. Новиков, Д.Н. Лобанов, А.Н. Яблонский

Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород E-mail: banatale@ipmras.ru

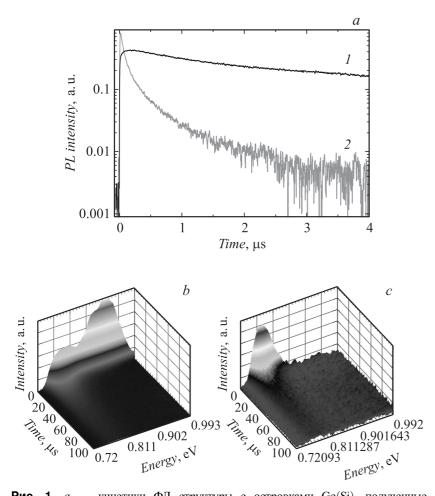
Поступило в Редакцию 10 апреля 2012 г.

Описана модификация метода спектроскопии возбуждения фотолюминесценции, позволяющая исследовать процессы поглощения света и излучательной рекомбинации носителей заряда в структурах с Ge(Si)/Si(001) самоформирующимися наноостровками. Особенность развитого метода состоит в регистрации сигнала фотолюминесценции исследуемых структур с временным и спектральным разрешением при различных энергиях кванта возбуждающего излучения. Регистрация с временным разрешением позволила разделить в спектрах фотолюминесценции исследованных структур сигналы, связанные с излучательной рекомбинацией носителей заряда в островках и смачивающем слое, а также выявить паразитные сигналы, связанные с комбинационным рассеянием возбуждающего излучения в кремниевой подложке.

Благодаря своим оптическим и электрофизическим свойствам, таким как наличие при комнатной температуре в спектрах фотопроводимости [1] и люминесценции [2] сигнала в области длин волн  $1.3-1.55\,\mu\mathrm{m}$ , структуры с  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})$  островками являются перспективными для создания на их базе оптоэлектронных приборов, интегрированных в современную кремниевую технологию. Кроме того, структуры с  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})$  островками служат модельной системой как для исследования механизмов роста напряженных полупроводниковых гетероструктур, так и для изучения процессов поглощения света и излучательной рекомбинации носителей заряда в низкоразмерных гетероструктурах II рода. Эффективным инструментом, позволяющим исследовать структуру энергетических уровней, вовлеченных в процессы поглощения и излучения света в

полупроводниках, является метод спектроскопии возбуждения фотолюминесценции  $(\Phi \Pi)$ . Данный метод хорошо развит для исследования структур с квантовыми ямами [3] и квантовыми точками [4] на основе прямозонных материалов, в которых реализуются гетеропереходы I рода. Однако к настоящему времени авторам известна только одна работа, посвященная изучению методом спектроскопии возбуждения  $\Phi \Pi$  структур с Ge(Si) самоформирующимися наноостровками [5].

В стандартной реализации метода спектроскопии возбуждения ФЛ регистрация сигнала ФЛ осуществляется на определенной (фиксированной) энергии фотона hv. При этом измеряется зависимость интенсивности сигнала ФЛ от энергии кванта возбуждающего излучения  $(h\nu_{\rm ex})$  [6]. Для структур с Ge(Si)/Si(001) наноостровками применение данного подхода может быть затруднено, так как сигнал ФЛ от них характеризуется широкой линией из-за существенной неоднородности островков по составу, размерам и распределению упругих напряжений, а также наличия в сигнале ФЛ линий, соответствующих оптическим переходам с участием и без участия фононов [7]. При этом из-за II типа разрыва зон на гетерогранице между Si матрицей и островком форма и положение линий ФЛ Ge(Si) островков сильно зависят от мощности возбуждающего излучения [8]. В процессе записи спектров возбуждения ФЛ SiGe структур при уменьшении энергии фотона возбуждающего излучения ниже значений  $hv_{\rm ex}=1.2-1.3\,{\rm eV}$ , соответствующих краю межзонного поглощения кремния, происходит резкое уменьшение коэффициента поглощения возбуждающего излучения [9] и как следствие значительное снижение концентрации неравновесных носителей заряда, генерируемых в активной области структуры. Поэтому при уменьшении  $hv_{\rm ex}$  ниже края межзонного поглощения в Si следует ожидать значительного изменения вида спектров ФЛ структур с Ge(Si) островками, аналогичного наблюдаемому при уменьшении мощности межзонной оптической накачки (при  $h\nu_{\rm ex} > 1.23\,{\rm eV}$ ). В связи с этим исследование спектров возбуждения ФЛ при фиксированной энергии кванта регистрируемого сигнала ФЛ представляется недостаточно информативным. В данной работе для исследования оптических свойств SiGe структур с самоформирующимися наноостровками предложена модификация метода спектроскопии возбуждения ФЛ, состоящая в регистрации при различных энергиях кванта возбуждающего излучения сигнала ФЛ как с временным, так и со спектральным разрешением (спектров и кинетики ФЛ).



**Рис. 1.** a — кинетики ФЛ структуры с островками Ge(Si), полученные при энергии фотона регистрируемого сигнала: I —  $h\nu$  = 775 meV ("медленный"сигнал) и 2 —  $h\nu$  = 905 meV ("быстрый"сигнал). c — спектры ФЛ с временным разрешением, полученые при энергии фотона возбуждающего излучения  $h\nu_{\rm ex}=1.6$  eV (b) и 1.15 eV (c). Данные получены при температуре 20 K и плотности мощности возбуждающего излучения 0.7 mJ/cm².

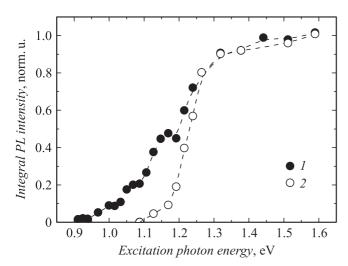
Достоинства предложенной модификации метода спектроскопии возбуждения ФЛ продемонстрированы на примере исследования многослойной (20 слоев) структуры с Ge(Si)/Si(001) самоформирующимися наноостровками, выращенной методом молекулярно-пучковой эпитаксии при температуре 650°C. Подробное описание технологии формирования многослойных структур с островками приведено в работе [10]. Для возбуждения сигнала ФЛ в исследуемых структурах использовалось импульсное излучение параметрического генератора света MOPO-SL с накачкой импульсным лазером Nd: YAG ("Spectra-Physics"). Длительность импульсов возбуждающего излучения составляла  $\sim 5\,\mathrm{ns}$ , частота повторения импульсов — 10 Нг. Энергия фотона возбуждающего излучения изменялась в широком спектральном диапазоне  $(h\nu_{\rm ex} = 0.9 - 1.6\,{\rm eV})$ , ширина линии излучения составляла  $\sim 0.2\,{\rm cm}^{-1}$ (0.02 meV). Сигнал ФЛ регистрировался с помощью решеточного монохроматора Acton 2300i, фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) на основе InP/InGaAs ("Нататаtsu") и цифрового осциллографа Le Croy WS 432 с полосой пропускания 500 MHz. Спектральный диапазон чувствительности  $\Phi$ ЭУ составлял 0.73—1.3 eV, время отклика  $\sim$  2 ns. Временное разрешение измерительного комплекса определялось длительностью импульса возбуждающего излучения MOPO-SL и составляло  $\sim 5$  ns. Запись спектров  $\Phi\Pi$  с временным разрешением осуществлялась следующим образом: для различных энергий фотона регистрируемого сигнала  $\Phi \Pi$  в диапазоне  $h\nu = 0.7 - 1.3\,\mathrm{eV}$  записывались временные зависимости сигнала  $\Phi \Pi$  (рис. 1, *a*). Из совокупности полученных кинетических кривых формировался трехмерный график — спектр  $\Phi$ Л с временным разрешением (рис. 1, b, c), отражающий изменение спектра ФЛ во времени после импульса возбуждающего излучения. При этом интегральный спектр ФЛ, аналогичный спектру, измеряемому при возбуждении исследуемых структур непрерывным излучением или при регистрации сигнала ФЛ без временного разрешения, может быть получен путем интегрирования измеренных спектро-кинетических зависимостей ФЛ по времени. Для получения спектров возбуждения ФЛ структур с Ge(Si) островками описания процедура проводилась для различных энергий фотона возбуждающего излучения в диапазоне  $hv_{\rm ex} = 0.9 - 1.6 \,\text{eV}.$ 

При межзонном возбуждении кремния  $(h\nu_{\rm ex}=1.6\,{\rm eV})$  в спектре ФЛ исследуемой структуры (рис. 1,b) наряду с сигналом экситонной ФЛ объемного кремния (не показан на рисунке) наблюдается две

широкие линии ФЛ с существенно различными временами спада: "медленный" сигнал в спектральном диапазоне  $h\nu=0.73-0.85\,\mathrm{eV}$  с характерным временем спада  $\sim 10-100\,\mu\mathrm{s}$  и "быстрый" сигнал в диапазоне  $h\nu=0.85-0.95\,\mathrm{eV}$  с характерным временем спада  $\sim 0.1-1\,\mu\mathrm{s}$  (рис. 1,a). Низкоэнергетичный, "медленный" сигнал ФЛ соответствует непрямой в пространстве оптической рекомбинации дырок, локализованных в  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})$  островках, и электронов, локализованных в  $\mathrm{Si}$  на гетерогранице II типа с островком [11]. Второй, "быстрый", сигнал ФЛ связывается с излучательной рекомбинацией носителей заряда в  $\mathrm{SiGe}$  смачивающем слое. Более подробно интерпретация сигналов от  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})$  островков будет проведена в отдельной работе. Из рис. 1,b,c видно, что положение и форма сигнала ФЛ от островков существенно зависит от  $h\nu_{\mathrm{ex}}$ .

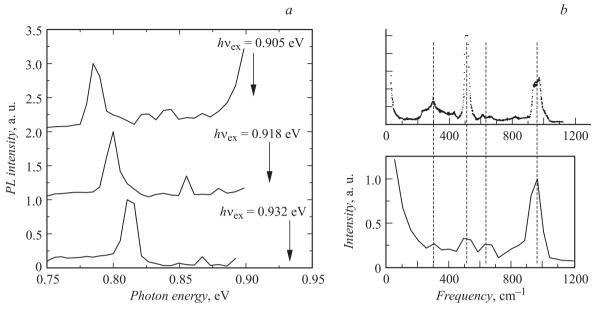
Для обнаруженных линий ФЛ были измерены спектры возбуждения ФЛ, представляющие собой зависимость интегральной интенсивности ФЛ от энергии кванта возбуждающего излучения (рис. 2). Ввиду частичного перекрытия сигналов ФЛ Ge(Si) островков и смачивающего слоя их разеделение осуществлялось путем интегрирования по различным временным ( $au_{int}$ ) и спектральным интервалам. Интегральная интенсивность компоненты, связанной с рекомбинацией носителей заряда в островках, определялась путем интегрирования сигнала ФЛ в спектральном диапазоне  $h\nu = 0.73 - 0.85\,\mathrm{eV}$  и во временном интервале  $au_{int} = 5 - 100 \, \mu$ s. Сигнал ФЛ смачивающего слоя был получен интегрированием сигнала  $\Phi \Pi$  в диапазоне энергий  $hv = 0.85 - 0.97 \,\mathrm{eV}$  и во временном интервале  $\tau_{int} \leqslant 1 \, \mu s$ . В полученном спектре возбуждения ФЛ Ge(Si) островков наблюдается заметное плечо в области энергий, меньших ширины запрещенной зоны кремния (рис. 2), возникновение которого связывается нами с поглощением возбуждающего излучения непосредственно в Ge(Si) островках. Заметим, что в работе [5], посвященной исследованию структур с Ge(Si)/Si(001) островками классическим методом спектроскопии возбуждения ФЛ, получен принципиально отличающийся результат: в спектре возбуждения ФЛ наблюдалось два узких пика, положение которых зависело от энергии детектирования сигнала. Данные пики авторы работы [5] связывают с поглощением на различных оптических переходах в островках.

При возбуждении исследуемых SiGe/Si гетероструктур излучением с энергией фотона  $h\nu_{\rm ex}=0.9-1.1~{\rm eV}$  в спектрах ФЛ наблюдалась серия узких интенсивных линий, положение которых зависело от энергии



**Рис. 2.** Спектры возбуждения ФЛ островков Ge(Si) ("медленный" сигнал ФЛ) (1) и SiGe смачивающего слоя ("быстрый" сигнал ФЛ) (2). Данные получены при температуре 20 K и плотности мощности возбуждающего излучения  $0.7 \, \mathrm{mJ/cm^2}$ .

кванта возбуждающего излучения аналогично линиям, описанным в работе [5] (рис. 3,a), а времена спада соответствовали длительности импульса возбуждения ( $\sim 5\,\mathrm{ns}$ ). Было обнаружено, что спектральное положение данных линий ФЛ с хорошей точностью совпадает со спектром комбинационного рассеяния света (КРС) в объемном кремнии [12] (рис. 3,b), что позволило связать наблюдаемый сигнал с КРС лазерного излучения в  $\mathrm{Si}(001)$  подложке. В случае записи спектров ФЛ SiGe структур без временного разрешения в условиях мощного импульсного оптического возбужедния данный сигнал КРС может быть ошибочно связан с оптическими процессами, проходящими в  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})$  островках. В то же время регистрация спектров ФЛ с наносекундным временным разрешением позволяет выделить линии КРС и исключить их из дальнейшего анализа ФЛ исследуемых структур. Это достигается путем исключения начального временного интервала  $(0-10\,\mathrm{ns})$  при интегрировании по времени сигналов ФЛ структур с  $\mathrm{Ge}(\mathrm{Si})/\mathrm{Si}(001)$ 



**Рис. 3.** a — интегральные ( $\tau_{int} = 10 \, \mathrm{ns}$ ) спектры ФЛ структур с островками Ge(Si) при различных энергиях кванта возбуждающего излучения  $h\nu_{\mathrm{ex}}$  ( $T = 300 \, \mathrm{K}$ ). b — сравнение интегрального ( $\tau_{int} = 10 \, \mathrm{ns}$ ) спектра ФЛ структур с островками Ge(Si) (внизу) и спектр КРС в Si (вверху), взятый из работы [12] ( $T = 300 \, \mathrm{K}$ ).

островками. Данный сдвиг начальной точки интегрирования не оказывает существенного влияния на интегральную интенсивность сигналов  $\Phi \Pi$ , связанных с излучательной рекомбинацией носителей заряда в Ge(Si) островках и смачивающем слое, так как данные сигналы имеют существенно бо́льшие характерные времена спада  $(0.1-100\,\mu s)$ .

Таким образом, в настоящей работе методика спектроскопии возбуждения  $\Phi \Pi$  была модифицирована для изучения процессов поглощения и излучения света в структурах с Ge(Si)/Si(001) самоформирующимися наноостровками. Регистрация спектров  $\Phi \Pi$  с временным разрешением позволила выделить в спектрах  $\Phi \Pi$  сигналы, соответствующие излучательным переходам в Ge(Si) островках и SiGe смачивающем слое, а также исключить из анализа сигналы, обусловленные KPC возбуждающего излучения в кремнии. Применение развитой методики дало возможность получить спектры возбуждения  $\Phi \Pi$ , связанной с излучательной рекомбинацией носителей заряда как в самоформирующихся Ge(Si) островках, так и в SiGe смачивающем слое.

Работа выполнена в рамках ГК 16.518.11.7018 и при поддержке РФФИ и программ президиума РАН.

## Список литературы

- [1] Tong S., Liu J.L., Wan J., Kang L. Wang // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 80. P. 1189-1191.
- [2] Apertz R., Vescan L., Hartmann A., Dieker C., Luth H. // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 66. P. 445–447.
- [3] Schneider R.P., Wessels B.W. // J. Electronic Materials. 1991. V. 20. P. 1117– 1123.
- [4] Mowbray D.J., Tribe W.R., Skolnick M.S., Sturge M.D., Hopkinson M., Cullis A.G., Whitehouse C.R. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. P. 17738–17744.
- [5] Adnane B., Karlsson K.F., Hansson G.V., Holtz P.O., Ni W.-X. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 96. P. 181 107-(1-3).
- [6] Yu P.Y., Kardona M. // Fundamentals of semiconductors (Physics and material properties). Berlin. Springer, 2010. Ed. 4. Chap. 7.1.5. P. 369.
- [7] Le Thanh V., Yam V., Boucaud P., Fortuna F., Ulysse C., Bouchier D., Vervoort L., Lourtioz J.-M. // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. P. 5851–5857.
- [8] Boucaud P., Sauvage S., Elkurdi M., Mercier E., Drunhes T., Le Thanh V., Bouchier D. // Phys. Rev. B. 2001. V. 64. P. 155 310-(1-6).

- [9] Dargys A., Kundrotas J. // Handbook on physical properties of Ge, Si, GaAs and InP. Vilnius. Science and Encyclopedia Publishers. 1994. Chap. 2.3. P. 100.
- [10] Дроздов Ю.Н., Красильник З.Ф., Кудрявцев К.Е., Лобанов Д.Н., Новиков А.В., Шалеев М.В., Шенгуров Д.В., Шмагин В.Б., Яблонский А.Н. // ФТП. 2008. Т. 42. С. 91–95.
- [11] Sunamura H., Usami N., Shiraki Y., Fukatsu S. // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 66. P. 3024–3026.
- [12] Temple P.A., Hathaway C.E. // Phys. Rev. B. 1973. V. 7. P. 3685–3697.