

研究快讯

非晶 Si/SiO_2 超晶格的制备及其光谱研究^{*}

刘宁宁[†] 孙甲明 潘少华 陈正豪 王荣平 师文生 王晓光

(中国科学院物理研究所光物理开放实验室, 北京 100080)

(中国科学院凝聚态物理中心, 北京 100080)

(2000 年 1 月 10 日收到)

用磁控溅射方法在玻璃基底上制备了非晶 Si/SiO_2 超晶格. 利用透射电子显微镜 (TEM) 和 X 射线衍射技术对其结构进行了分析, 结果表明, 超晶格中 Si 层大部分区域为非晶相, 局域微区呈现有序结构, 其厚度由 1.8—3.2 nm 变化, SiO_2 层厚度为 4.0 nm. 并采用多种光谱测量技术, 如吸收光谱、光致发光光谱和 Raman 光谱技术, 对该结构的光学性质进行了系统研究. 结果表明, 随纳米 Si 层厚度的减小, 光学吸收边以及光致荧光峰发生明显蓝移, Raman 峰发生展宽, 即观测到明显的量子尺寸效应.

PACC: 7865; 6865; 0765

1 引 言

半导体 Si 的应用在微电子学领域已获得巨大成功, 然而由于它是间接带隙的半导体, 其固有发光效率极低, 这就大大限制了它在发光器件中的应用. 探索 Si 基材料的可见光发射是材料科学和光电子科学领域里多年来没有完全解决而又意义重大的研究课题. 自从 1990 年, Canham^[1] 观测到了多孔 Si 高效率可见光的发射以来, 人们对 Si 基材料的发光机理以及将其投入实际应用这两个方面都进行了广泛深入的研究^[2,3]. 事实证明, 低维量子结构是提高 Si 基材料发光效率的重要手段之一. 虽然人们已对多孔 Si 和纳米 Si 颗粒的发光机理进行了大量研究, 然而, 由于纳米材料的表面和界面对其光学性质有很大的影响, 多孔 Si 和纳米 Si 可见光发射的确切机理仍有待深入探讨. 另外, 无论是多孔 Si 或是纳米 Si, 由于其尺寸分布的不均匀, 空间分布的无序, 很难期望其有良好重复的电输运与光学特性. 最近, Lu 等^[4] 报道了用分子束外延 (MBE) 生长技术制备的一种新型量子结构——非晶 Si/SiO_2 ($a\text{-Si}/\text{SiO}_2$) 超晶格, 并观测到了其室温可见光的发射. 这种 $a\text{-Si}/\text{SiO}_2$

超晶格结构具有两个优点: 1) 易于生长 2) 由于它是非晶材料, 波矢 k 守恒的跃迁定则不再成立. 考虑到它与传统 Si 集成工艺的兼容性, 这种 $a\text{-Si}/\text{SiO}_2$ 超晶格有望成为非常理想的 Si 基发光材料.

本文介绍了用磁控溅射方法在玻璃基底上生长的具有不同 Si 层厚度的 $a\text{-Si}/\text{SiO}_2$ 超晶格结构. 并采用多种光谱技术, 如吸收光谱、光致发光光谱和 Raman 光谱技术, 对其光吸收和光发射特性进行了研究, 并观测到了明显的量子尺寸效应.

2 样品制备与表征

采用射频磁控溅射技术在玻璃基底上生长出实验所用 $a\text{-Si}/\text{SiO}_2$ 超晶格结构. 溅射室背底真空度为 2×10^{-4} Pa, 溅射气压为 1.3 Pa. 伴随衬底在靶前不断往返运动, 通过控制 O_2 气体的开关来交替溅射 Si 层和 SiO_2 层, 即可形成 Si/SiO_2 超晶格结构. 通过控制溅射功率, 可以随意设计 Si 层和 SiO_2 层厚度. 实验所用 A, B, C, 和 D 共 4 个样品的 Si 层溅射功率分别为 1000, 800, 600 和 500 W, 而 SiO_2 层的溅射功率保持在 1000 W.

^{*} 国家攀登计划资助的课题.

[†] E-mail: nliu@aphy.iphy.ac.cn

Si/SiO₂ 超晶格结构(样品 B)的透射电子显微镜(TEM)分析的结果如图 1 所示. 可以看出, 样品具有很好的超晶格结构, 其中暗条纹与亮条纹分别对应 Si 层和 SiO₂ 层. 对 Si 层结构的进一步分析表明, 大部分区域为非晶相, 局域微区存在有序结构. 我们可得到超晶格中 SiO₂ 层厚度为 4.0 nm, Si 层厚度为 2.4 nm. 实验中所用 4 个样品具有相同的 SiO₂ 层厚度(4.0 nm)和不同的 Si 层厚度, 对应于 A, B, C, D 样品, Si 层厚度分别为 3.2, 2.4, 1.8 和 1.5 nm. X 射线小角衍射的结果与 TEM 分析的结果一致.

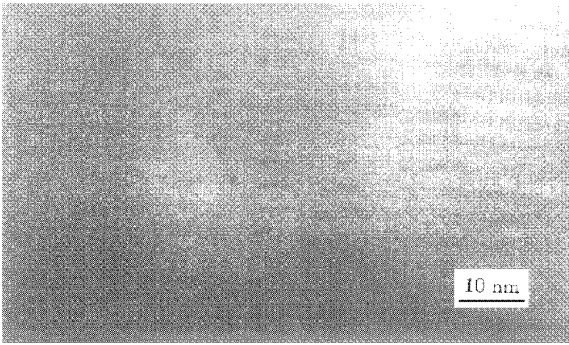


图 1 样品 B(Si 层厚度为 2.4 nm)的截面 TEM 图

α -Si/SiO₂ 超晶格结构吸收光谱的测量是在 CARY2390 型光谱仪上进行的. 其光致发光光谱和 Raman 光谱的测量均是在 SPEX-1403 Raman 光谱仪上进行的. Ar⁺ 激光器的激发波长为 488 nm. 测量过程中扣除了基底的影响.

3 结果与分析

为了对其光学性质进行研究, 我们测量了具有不同 Si 层厚度的 α -Si/SiO₂ 超晶格结构的吸收光谱, 结果如图 2 所示. 可以看出, α -Si/SiO₂ 超晶格结构的光学吸收边随 Si 层厚度的减小发生明显蓝移, 这表明其光学带隙随 Si 层厚度的减小而增加. 我们将其原因归结为超晶格中的量子限制效应引起了带隙的展宽.

根据 Tauc 公式^[5]：
$$(\alpha\hbar\omega)^{1/2} = B(\hbar\omega - E_g), \tag{1}$$
可得到这些超晶格结构的光学带隙, 其中 α 为吸收系数; $\hbar\omega$ 为光子能量; B 为与材料性质有关的系数; E_g 为光学带隙. 对应于样品 A, B, C, D, 其光学带隙分别为 1.94, 2.24, 2.29 和 2.38 eV.

图 3 为 4 个样品的室温光致发光(PL)光谱. 图 3 中显示出在 500—850 nm (2.48 —1.46 eV) 区域, 除了样品 A 以外, 其它 3 个样品均呈现很宽、很强的 PL 峰. 并且随着纳米 Si 层厚度的减小, 它们的 PL 峰位向短波方向发生明显的移动. 这与吸收光谱的结果是一致的, 我们仍将其归结为量子限制效应的结果, 文献[6]也作了类似报道.

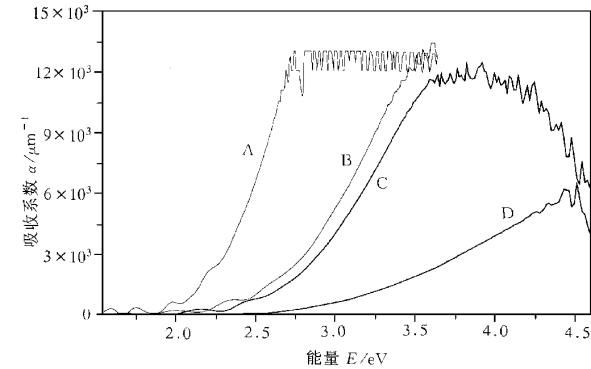


图 2 具有不同 Si 层厚度的 α -Si/SiO₂ 超晶格结构的吸收光谱 A 为 3.2 nm B 为 2.4 nm C 为 1.8 nm D 为 1.5 nm

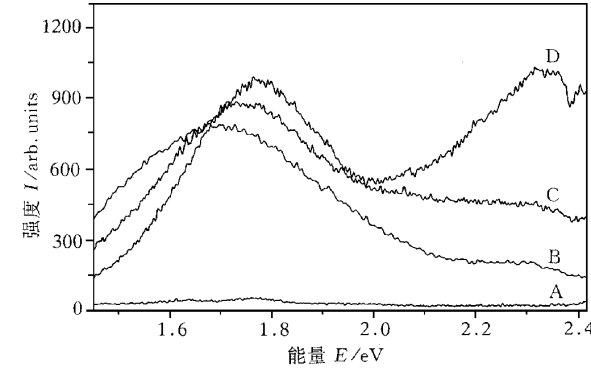


图 3 具有不同 Si 层厚度的 α -Si/SiO₂ 超晶格结构的室温光致发光光谱 图注同图 2

α -Si/SiO₂ 超晶格结构的 Raman 光谱如图 4 所示. 图 4 中出现了很强、很宽的 Raman 峰, 峰位位于 480 cm⁻¹, 呈现明显的非晶特征^[7]. 并且, 随着 Si 层厚度的减小, Raman 峰的半宽度发生明显宽化, 这主要是由于随着 Si 层厚度的减小而结构的无序化增加所致. 另外, 值得一提的是, 在样品 C 和 D 的 Raman 光谱中还出现了一个很锐的 Raman 峰, 峰位位于 520 cm⁻¹处, 该峰为 Si 体单晶的特征峰^[8]. 由此可知, 在我们的超晶格结构中, Si 层大部分区域为非晶结构, 而局域微区呈现晶态. 这与上文所述 TEM 分析的结果是一致的.

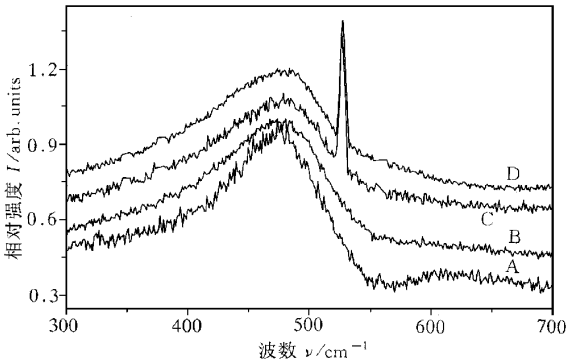


图 4 具有不同 Si 层厚度的 $a\text{-Si/SiO}_2$ 超晶格结构的 Raman 光谱 图注同图 2

以上结果表明,对于 Si 基材料而言,其低维结构的特性与体材料相比发生了较大变化.夏建白等^[9]利用经验势同质结模型方法计算得到了 Si/SiO₂ 超晶格中 Si 层的能带结构.他们认为,当 Si 层取向为(100)方向,厚度为 1—6 nm 时,导带的能量最低点在 Γ 点,即 Si 层由体 Si 的间接带隙转变为直接带隙,从而使发光效率大大提高.依靠量子限制效应来实现高效率 Si 基发光,是实现集成电子学功能和光子学功能于一体的 Si 基光电子器件与回路应用的行之有效的方法之一.

4 结 论

采用磁控溅射技术在玻璃衬底上制备了具有不

同 Si 层厚度的 $a\text{-Si/SiO}_2$ 超晶格结构,并对其进行了系统研究. TEM 照片显示出超晶格结构中, Si 层的大部分区域为非晶相,局域微区存在有序结构. 并对其进行了光谱研究,在 Raman 光谱、吸收光谱以及光致发光光谱中均观测到了明显的量子尺寸效应,其表现为 随着 Si 层厚度的减小,光学吸收边和 PL 峰均发生明显蓝移;此外,由于无序化的增加, 480 cm⁻¹处的 Raman 峰发生明显宽化. 我们的研究表明,量子限制效应是影响低维材料光学性质的重要因素之一,此外,样品的表面、界面效应对其光学性质也会产生重要的影响.

[1] L. T. Canham, *Appl. Phys. Lett.*, **57**(1990),1046.
[2] Y. Kanemitsu, S. Okamoto, M. Otake, S. Oda, *Phys. Rev.*, **B 55**(1997),R7375.
[3] B. Hamilton, J. Jacobs, D. A. Hill, R. F. Pettifer, D. Teehan, L. T. Canham, *Nature*, **393**(1998),443.
[4] Z. H. Lu, D. J. Lockwood, J. M. Baribeau, *Nature*, **378**(1995),258.
[5] S. V. Novikov, J. Sinkkonen, O. Kilpela, S. V. Gastev, *J. Crystal Growth*, **175/176**(1997),514.
[6] D. J. Lockwood, Z. H. Lu, J. M. Baribeau, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996),539.
[7] P. D. Persans, *Phys. Rev.*, **B39**(1989),1797.
[8] S. M. Prokes, O. J. Glembocki, *Phys. Rev.*, **B49**(1994),2238.
[9] J. B. Xia, K. W. Cheah, *Phys. Rev.*, **B56**(1997),14925.

FABRICATION AND SPECTROSCOPIC STUDIES OF
a-Si/SiO₂ SUPERLATTICES*

LIU NING-NING SUN JIA-MING PAN SHAO-HUA

CHEN ZHENG-HAO WANG RONG-PING SHI WEN-SHENG WANG XIAO-GUANG

(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Center for Condensed Matter Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Received 10 January 2000)

ABSTRACT

Amorphous Si/SiO₂ superlattices have been deposited on glass substrates using two-target alternation magnetron sputtering technique. The samples are characterized using transmission electron microscope and low-angle X-ray reflectance techniques. The results indicate that most of the regions in Si layers consist of amorphous phase in the superlattices, while the regular structure appears in some local regions rarely. The thicknesses of Si layers are in a range from 1.8 to 3.2 nm and the thickness of SiO₂ layer is 4.0nm in all cases. The samples are systematically studied using absorption, photoluminescence (PL) and Raman spectroscopy techniques. The absorption edge positions and PL peaks shift towards shorter wavelengths while Raman spectra show broader peaks with decreasing Si layer thickness. The results are mainly attributed to the quantum confinement effects.

PACC : 7865 ; 6865 ; 0765

* Project supported by the National “Climb” Program of China.