

НЕЛИНЕЙНОЕ ОПТИЧЕСКОЕ УСИЛЕНИЕ В СТОЛБЧАТЫХ СТРУКТУРАХ ZnO

А.А. Лотин, О.А. Новодворский, Е.В. Хайдуков, В.Я. Панченко

*Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН, 140700, Шатура,
Lotin_82@mail.ru*

The rod structures and a single crystal film of ZnO were grown on the silicon (100) and sapphire (00.1) substrates by pulsed laser deposition. The cross section sizes of ZnO rods grown at 400⁰C and 500⁰C are 50-270 nm and 150-400 nm, respectively, as the scan electron measurements indicated. The low temperature photoluminescence spectra of ZnO rod structures excited by the pulsed-periodical excimer laser (248 nm) and continuous He-Cd laser (325 nm) have been investigated. It has been established that the rod structures of ZnO possess nonlinear optical amplification, which manifests itself in the nonlinear dependence of photoluminescence intensity versus optical excitation power.

В последнее время основой электронных устройств являются низкоразмерные структуры (квантовые ямы, нити и точки) поскольку они обладают уникальными оптическими и электрическими свойствами и более высокой температурной стабильностью по сравнению с пленками микронных толщин [1].

В качестве материалов для создания низкоразмерных структур широко используются широкозонные полупроводники, такие как GaN, SiC, ZnSe и др., в ряду которых особое место занимает оксид цинка [2]. Оксид цинка является прямозонным полупроводником с шириной запрещенной щели 3,37 эВ, обладает высокой энергией связи экситонов (60 мэВ), температурной и радиационной стойкостью, что позволяет оптоэлектронным устройствам на его основе работать в УФ диапазоне спектра при самых экстремальных условиях [3].

Низкоразмерные структуры получают различными способами, например, химическим травлением, фото- и рентгенолитографией. Но оказалось, что значительно проще и дешевле создавать наноструктуры посредством их самоорганизации на подложке несогласованного по кристаллическим параметрам материала. Такой режим роста носит название Фольмера-Вебера (по фамилиям авторов) [4]. Существует большое количество работ по реализации одномерных структур ZnO (наноштырей, нанотрубок, квантовых нитей) различными методами роста и исследованию их свойств [5,6].

В настоящей работе выращены квазиодномерные структуры ZnO на кремниевых подложках (100) и монокристаллическая пленка ZnO на сапфировой подложке (00.1) методом лазерно-плазменного осаждения. Рост осуществлялся в высоковакуумной камере (10⁻⁷ Торр) при температурах 400⁰C и 500⁰C. Схема экспериментальной установки описана нами ранее в работе [7]. В качестве высоковакуумных насосов одновременно использовались турбомолекулярный и криогенный насосы, что позволило достигать в рабочем объеме вакуум не хуже 10⁻⁷ Торр с относительно низким содержанием водорода и углерода. Абляция керамических мишеней

осуществлялась эксимерным лазером LC-7020 при частоте повторения импульсов 10 Гц ($\lambda=248$ нм, $\tau=15$ нс). Плотность энергии лазерного излучения на мишени составляла 2 Дж/см². Столбчатые структуры ZnO выращивались непосредственно как на Si-подложках, так и на кремниевых подложках с предварительно нанесенным слоем ZnO:Ga (Ga-2%) толщиной ~50 нм. Выбор кремния в качестве подложек обусловлен большим рассогласованием между параметрами a кристаллической решетки кремния и оксида цинка (~67,1%), для реализации роста по режиму Фольмера-Вебера. Полупроводники, обладающие гексагональной структурой, имеют приоритетный рост вдоль оси c , т.к. энергия образования связи между атомами кристалла в этом направлении меньше по сравнению с направлением в плоскости. Кроме того, к этому факту следует добавить, что молекула оксида цинка проявляет сильно выраженную полярность, что способствует столбчатому росту ZnO [3].

Образцы были исследованы методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). На рис.1 представлены СЭМ-изображения поверхности и поперечного сечения столбчатых структур ZnO, выращенных на Si-подложке (100) при температуре роста 400⁰С (а) и 500⁰С (b). Результаты исследований показали, что поперечный размер столбчатых структур ZnO выращенных на Si-подложках при температуре 400⁰С составляет 150-600 нм, а при температуре подложки 500⁰С от 50 до 270 нм. Высота структур ~400 нм и ~750 нм соответственно. На рис.2. приведены СЭМ-изображения поверхности и поперечного сечения столбчатых структур ZnO, выращенных на ZnO:Ga/Si (100) при температуре роста 400⁰С (а) и 500⁰С (b). В данных структурах ZnO также проявляется температурная зависимость характеристических размеров (рис.2). Толщина монокристаллической пленки ZnO составляла ~700 нм.

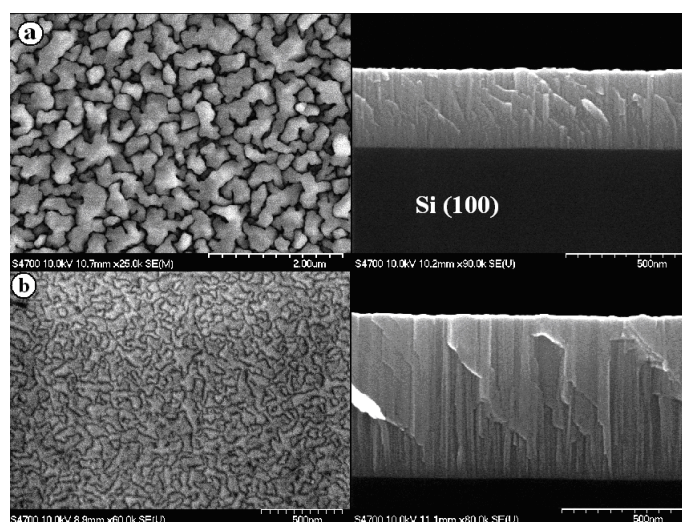


Рис.1. СЭМ-изображения поверхности и поперечного сечения столбчатых структур ZnO, выращенных на кремниевой подложке (100) при температуре роста 400⁰С (а) и 500⁰С (b).

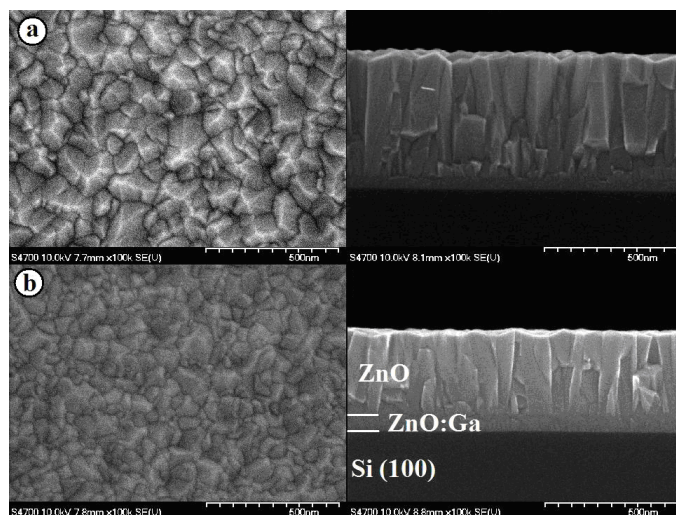


Рис.2. СЭМ-изображения поверхности и поперечного сечения столбчатых структур ZnO, выращенных на ZnO:Ga/Si-подложке при температуре роста 400⁰C (a) и 500⁰C (b).

Оптические свойства наноструктур и монокристаллической пленки ZnO изучались посредством измерения спектров фотолюминесценции (ФЛ). Фотовозбуждение осуществлялось непрерывным He-Cd лазером мощностью 23 мВт ($\lambda=325$ нм) и импульсно-периодическим KrF-лазером. На рис.3 приведены низкотемпературные (8 К) спектры ФЛ столбчатой структуры ZnO выращенной на ZnO:Ga/Si подложке при температуре 400⁰C и пленки оксида цинка, выращенной на сапфировой подложке. В спектрах ФЛ возбужденных He-Cd лазером (рис.3а) ярко выражен пик вблизи 3,357 эВ соответствующий связанному экситону VX (1). Также в данных спектрах наблюдается переход D₀X вблизи 3,217 эВ, который относится к экситону связанному с донором (2). Данная линия отчетливо проявляется и в спектрах возбужденных импульсным излучением. Интенсивность остальных оптических линий была в десятки раз меньше линии 1. В спектрах ФЛ возбужденных мощным импульсным излучением (рис.3b) доминирование линии 1 наблюдалось в диапазоне накачки от 0,135 до 0,34 МВт/см². Далее в спектрах превалировали 5 полос соответствующих переходам с уровней, связанных с наличием примесей и дефектов в наноструктурах ZnO.

Полоса излучения, обозначенная как 3 (3,178 эВ) является результатом излучательного перехода с неглубокого донорного уровня на акцепторный. Линия вблизи 3,002 эВ (4) связана с наличием дефектов в виде вакансией цинка V_{Zn}. Пик в зеленой области спектра при 2,449 эВ также обусловлен наличием дефектов, и данная полоса часто наблюдается в образцах ZnO независимо от метода выращивания. Большинство исследователей полагают, что природа его происхождения связана с наличием в пленках ZnO вакансий кислорода V_O и междоузлий цинка O_{Zn} [3,8].

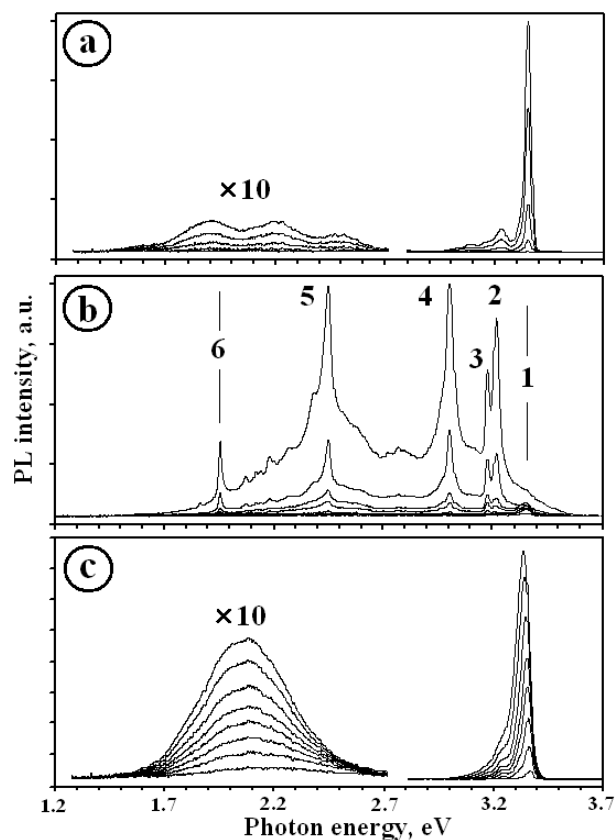


Рис.3. Низкотемпературные спектры ФЛ столбчатой структуры ZnO выращенной на ZnO:Ga/Si подложке при температуре 4000С: а – возбужденные непрерывным He-Cd-лазером ($0 \div 92$ кВт/см²) и б – импульсно-периодическим KrF-лазером ($0,135 \div 1,01$ МВт/см²), с – спектры ФЛ пленки ZnO, возбужденные KrF-лазером.

Интенсивность линии 1 в спектрах фотолюминесценции столбчатой структуры и монокристаллической пленки ZnO с ростом мощности оптической накачки линейно возрастала при возбуждении как непрерывным, так и импульсно-периодическим излучением (рис.4а). Зависимость интенсивности остальных линий ФЛ наноструктур оксида цинка от накачки при возбуждении мощным импульсным излучением эксимерного лазера возрастала экспоненциально. Исключением явилась линия I₁, которая показала линейную зависимость (рис.4б).

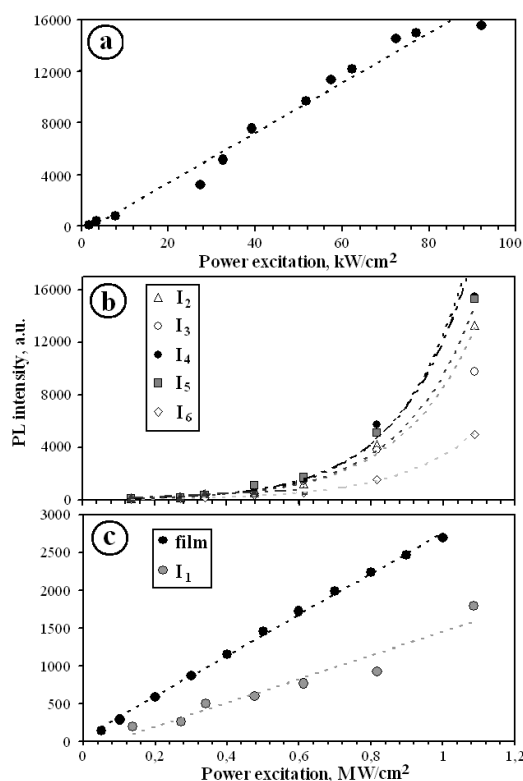


Рис.4. Зависимости интенсивности ФЛ столбчатой структуры ZnO выращенной на ZnO:Ga/Si подложке при температуре 400⁰C от мощности оптической накачки He-Cd-лазером (a) и KrF-лазером (b). c - зависимости интенсивности линии I столбчатой структуры ZnO и монокристаллической пленки.

В данной работе были выращены квазиодномерные столбчатые структуры ZnO на Si-подложках и монокристаллическая пленка ZnO. Установлено, что поперечные размеры данных структур уменьшаются с ростом температуры подложки. Интенсивность краевой люминесценции образцов показала линейный рост с увеличением мощности возбуждающего как непрерывного, так и импульсного излучения. Экспоненциальная зависимость интенсивности линий ФЛ более глубоких уровней от плотности возбуждающего импульсно-периодического излучения говорит о вынужденном характере излучения.

Работа выполнена при поддержке гранта МНТЦ № 3294, гос. контракта № 02.513.11.3169, проект ZnO гранта РФФИ № 09-08-00291.

1. Ж.И. Алферов, УФН, **172** (9), 1073 (2002)
2. K. Takahashi, A. Yoshikawa and A. Sandhu, Springer Berlin Heidelberg, p.25-96 (2007)
3. U. Ozgur, Ya.I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. A. Reshchikov, S. Dogan, V. Avrutin, S.-J. Cho, H. Morkoc. J. Appl. Phys., **98**, 041301 (2005)
4. Ж.И. Алферов. ФТП. Том **32**, №1 (1998)
5. B. Zou, R. Liu, F. Wang, A. Pan, L. Cao and Zhong L. Wang, J. Phys. Chem. B, V. **110**, 12865-12873 (2006)
6. B.P. Zhang, N.T. Binh, K. Wakatsuki, N. Usami, Y. Segawa, Appl. Phys. A **79**, 1711–1714 (2004)
7. О.А. Новодворский, Л.С. Горбатенко, В.Я Панченко, О.Д. Храмова, Е.А. Черобыло, К. Венцель, Й.В. Барта, В.Т. Бублик, К.Д. Щербачев, ФТП, **43** (4), 440 (2009)
8. X.L. Wu, G.G. Siu, C.L. Fu, H.C. Ong, Appl. Phys. Letters, V. **78**, p. 2285-2287 (2001)