

# Возбуждение эрбия в матрице $\text{SiO}_2$ :Si-nc при импульсной накачке

© О.Б. Гусев\*, М. Войдак, М. Клик, М. Форкалес, Т. Грегоркевич

\* Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Van der Waals–Zeeman Institute, University of Amsterdam, NL-1018 XE Amsterdam, The Netherlands

E-mail: oleg.gusev@mail.ioffe.ru

Исследована фотолюминесценция ионов  $\text{Er}^{3+}$  в матрице  $\text{SiO}_2$ , включающей нанокристаллы кремния диаметром 3.5 nm, при резонансной и нерезонансной импульсной накачке с длительностью импульса  $5 \cdot 10^{-9}$  s. Эффективное сечение возбуждения эрбия при импульсной накачке  $\sigma_{\text{эф}} = 8.7 \cdot 10^{-17}$   $\text{cm}^2$  близко к сечению возбуждения нанокристаллов. Сравнение данных по интенсивности фотолюминесценции эрбия, полученных для матрицы  $\text{SiO}_2$  с нанокристаллами и без них, позволило определить абсолютную концентрацию оптически активных нанокристаллов, способных возбуждать ионы эрбия; концентрацию оптически активного эрбия и среднее число ионов эрбия, возбуждаемых одним нанокристаллом. Результаты исследования показывают, что процесс передачи возбуждения от одного иона эрбия другому относительно медленный, что объясняет слабую эффективность возбуждения эрбия при импульсной накачке в матрице  $\text{SiO}_2$ , включающей нанокристаллы кремния.

Работа выполнена при поддержке грантов INTAS (N 03-51-6486), Российского фонда фундаментальных исследований и программы РАН „Новые материалы“.

## 1. Введение

Кремний есть и, очевидно, останется основным материалом современной электроники. Одна из перспективных возможностей использования кремния в оптоэлектронике — легирование его эрбием, который при переходе из первого возбужденного состояния в основное излучает на длине волны 1.54  $\mu\text{m}$ , совпадающей с минимумом поглощения волоконно-оптических линий связи. Эффективность возбуждения эрбия в кремнии на несколько порядков выше, чем в диэлектрических матрицах. Однако температурное гашение эрбиевой люминесценции в кремнии в отличие от диэлектрической матрицы  $\text{SiO}_2$  очень сильное. В настоящее время интенсивно исследуется новый тип оптической среды, который совмещает преимущества полупроводниковой и диэлектрической матриц [1–4]. Это гетерогенная система, представляющая собой матрицу  $\text{SiO}_2$ , легированную эрбием и содержащую нанокристаллы (nc) кремния. В этом случае излучение накачки в основном поглощается нанокристаллами кремния, которые затем эффективно передают энергию ионам эрбия, находящимся в  $\text{SiO}_2$ . Благодаря отсутствию безызлучательных процессов де-возбуждения эрбия в  $\text{SiO}_2$ , характерных для кремния, интенсивность фотолюминесценции (ФЛ) эрбия практически не зависит от температуры.

Подавляющее большинство работ, посвященных исследованию механизма возбуждения эрбия в гетерогенной матрице  $\text{SiO}_2$ :Si-nc, было выполнено при постоянной накачке. Однако импульсная накачка с длительностью импульсов, меньшей характерных времен возбуждения и де-возбуждения эрбия и времени жизни экситонов в нанокристаллах кремния, позволяет лучше понять механизм передачи энергии от нанокристаллов ионам эрбия и определить ряд параметров, характе-

ризующих матрицу  $\text{SiO}_2$ :Er:Si-nc [5]. Все отмеченное важно для поисков путей увеличения эффективности люминесценции эрбия в этой матрице.

## 2. Экспериментальные результаты

Три пленки  $\text{SiO}_2$  толщиной 100 nm были выращены методом PECVD на подложке  $\text{SiO}_2$ . Две из них содержали нанокристаллы кремния, полученные за счет 8% пересыщения кремнием стехиометрического состава газовой смеси  $\text{SiO}_x$ . Диаметр нанокристаллов кремния 3.5 nm и их концентрация  $5 \cdot 10^{18}$   $\text{cm}^{-3}$  определялись с помощью планарного пропускающего электронного микроскопа (ТЕМ). Эрбий был имплантирован в один из двух образцов  $\text{SiO}_2$ :Si-nc и в пленку  $\text{SiO}_2$  при одинаковых энергиях и дозах. Концентрация эрбия, имплантированного в эти образцы, составляла  $2.2 \cdot 10^{20}$   $\text{cm}^{-3}$ . Подробное описание технологии приготовления образцов можно найти в [2]. Сводные данные для образцов, исследовавшихся в этой работе, представлены в таблице.

Фотолюминесцентные измерения выполнялись при импульсной накачке перестраиваемым оптическим параметрическим генератором (ОПГ) с длительностью импульса  $5 \cdot 10^{-9}$  s и частотой повторений 20 Hz. ОПГ позволял перестраивать длину волны накачивающего излучения в диапазоне 500–560 nm при спектральной

Сводные данные для исследованных образцов

Номер образца	Состав	[Si-nc], $10^{18}$ $\text{cm}^{-3}$	[Er], $10^{20}$ $\text{cm}^{-3}$
1	$\text{SiO}_2$ :Si-nc	5	
2	$\text{SiO}_2$ :Si-nc:Er	5	2.2
3	$\text{SiO}_2$ :Er		2.2

ширине линии излучения 5 nm. Регистрируемая ФЛ проходила через решеточный монохроматор и детектировалась фотоумножителем Hamamatsu NIR.

Спектры ФЛ в области 1.5  $\mu\text{m}$  образцов № 2 и 3, содержащих эрбий, имели совершенно одинаковую форму и спектральное положение максимума (рис. 1). Люминесценция в этой области обусловлена излучательными переходами иона эрбия  $\text{Er}^{3+}$  из первого возбужденного состояния  $^4I_{13/2}$  в основное  $^4I_{15/2}$ . Резонансное возбуждение эрбия в образце № 3 осуществлялось ОПГ, установленным на длину волны 520 nm, соответствующую переходу  $^4I_{15/2} \rightarrow ^2H_{11/2}$ . Для образца № 2 идентичный спектр был получен в широкой спектральной области возбуждения. На рис. 2 показаны спектры возбуждения ФЛ образцов № 2 и 3, полученные на длине волны 1.54  $\mu\text{m}$ , соответствующей максимуму спектральной линии эрбиевой ФЛ.

Основные экспериментальные результаты представлены на рис. 3. Кривая *a* относится к образцу № 2, возбуждаемому на длине волны 510 nm, при которой возможно возбуждение эрбия только через нанокристаллы; кривая *b* — к образцу № 2, возбуждаемому на длине волны 520 nm, при которой возможно как прямое возбуждение эрбия, так и возбуждение через нанокристаллы

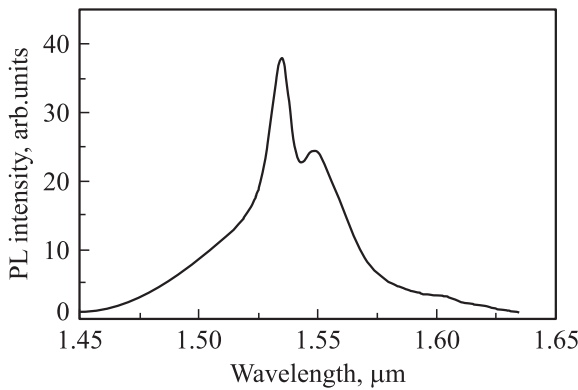


Рис. 1. Типичный спектр фотолуминесценции образцов № 2 и 3.  $T = 300$  К.

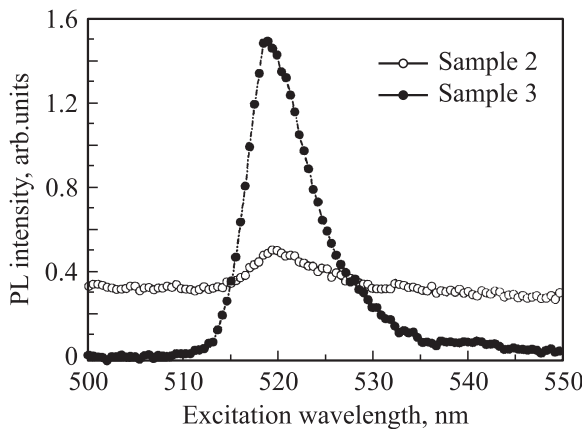


Рис. 2. Спектры возбуждения образцов № 2 и 3, полученные на длине волны 1.54  $\mu\text{m}$ .  $T = 300$  К.

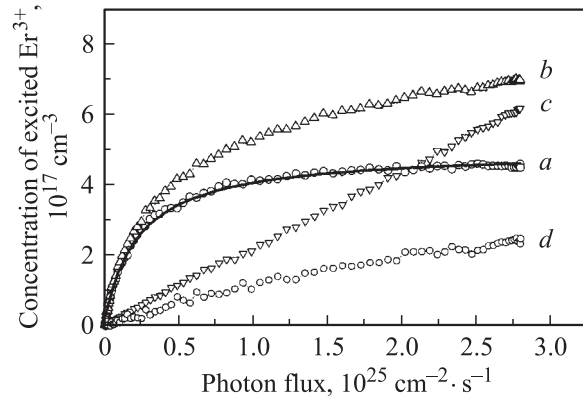


Рис. 3. Концентрация возбужденного эрбия в зависимости от плотности потока фотонов. *a, b* — образец № 2 при накачке излучением с длиной волны 510 и 520 nm соответственно, *c* — образец № 3 при резонансной накачке эрбия на длине волны 520 nm, *d* — разница между *b* и *a*.  $T = 300$  К.

кремния; кривая *c* — к образцу № 3, возбуждаемому на длине волны 520 nm (резонансное возбуждение эрбия в матрице  $\text{SiO}_2$ ); кривая *d* — разница между данными *b* и *a*, которая таким образом соответствует прямому возбуждению эрбия в присутствии нанокристаллов.

Спектр ФЛ нанокристаллов кремния (образец № 1) имел вид довольно широкой спектральной линии с максимумом около 900 nm. Сечение возбуждения нанокристаллов кремния в этом образце  $1.08 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$  и время жизни экситонов в нанокристаллах 100  $\mu\text{s}$  были измерены в работе [2].

### 3. Обсуждение результатов

Важной особенностью результатов, представленных на рис. 3, является их калибровка по абсолютной концентрации возбужденного эрбия для обоих образцов. Для ее проведения мы использовали простую двухуровневую модель возбуждения эрбия при прямом поглощении фотонов ионами эрбия. В этом случае концентрация возбужденного эрбия описывается кинетическим уравнением

$$\frac{dN_{\text{Er}}^*}{dt} = \sigma\Phi(N_{\text{Er}} - N_{\text{Er}}^*) - \frac{N_{\text{Er}}^*}{\tau}, \quad (1)$$

где  $\sigma$  — сечение поглощения фотонов ионами эрбия,  $\Phi$  — поток накачивающих фотонов,  $N_{\text{Er}}$  и  $N_{\text{Er}}^*$  — полная концентрация и концентрация возбужденных ионов эрбия соответственно,  $\tau$  — время жизни ионов эрбия в первом возбужденном состоянии  $^4I_{13/2}$ . В нашем случае, поскольку длительность импульса ОПГ (5 ns) много короче, чем характерное время жизни эрбия в возбужденном состоянии, решение уравнения (1) имеет вид

$$N_{\text{Er}}^* = N_{\text{Er}}(1 - \exp(-\sigma\Phi\Delta t)), \quad (2)$$

где  $\Delta t$  — длительность импульса ОПГ,  $\sigma$  — сечение поглощения эрбия в матрице  $\text{SiO}_2$ , которое составляет  $2 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$  на длине волны 520 nm, соответствующей

переходу  ${}^4I_{15/2} \rightarrow {}^2H_{11/2}$  во внутренней оболочке иона эрбия [6]. Таким образом, зная концентрацию введенного эрбия и используя выражение (2), мы определили концентрацию возбужденного эрбия в образце № 3 в зависимости от уровня накачки.

Как видно из рис. 3, концентрация возбужденного эрбия для образца № 2, обусловленная прямым поглощением фотонов ионами эрбия (кривая *d*), линейно зависит от потока фотонов, подобно зависимости, наблюдаемой для концентрации возбужденного эрбия в образце № 3, но со значительно меньшим наклоном. Полагая, что сечение поглощения фотонов ионами эрбия одинаково в этих двух образцах, мы нашли, что концентрация оптически активных ионов эрбия в образце № 2 составляет около 40% от концентрации оптически активного эрбия в образце № 3.

В матрице  $\text{SiO}_2$ :Si-nc при энергиях фотонов, больших ширины запрещенной зоны нанокристаллов кремния, эрбий возбуждается в основном за счет передачи возбуждения от нанокристаллов ионам эрбия. В этом случае сначала возбуждаются ионы эрбия, находящиеся вблизи нанокристаллов, а затем возбуждение может передаваться от одного иона эрбия другому. Как видно из рис. 3 (кривая *a*), концентрация возбужденного эрбия в присутствии нанокристаллов быстро насыщается на уровне, значительно меньшем, чем концентрация оптически активных ионов эрбия, определенная для образца № 2. Это значит, что процесс передачи возбуждения от иона эрбия, находящегося вблизи нанокристалла, другим ионам эрбия медленный; в нашем случае при импульсной накачке его можно не учитывать. В этом случае концентрацию возбужденных ионов эрбия при межзонном поглощении накачки нанокристаллами можно представить в виде, аналогичном (2),

$$N_{\text{Er}}^* = nN_{\text{nc}}(1 - \exp(-\sigma_{\text{eff}}\Phi\Delta t)), \quad (3)$$

где  $\sigma_{\text{eff}}$  — эффективное сечение возбуждения эрбия при поглощении накачки нанокристаллами,  $n$  — число ионов эрбия, которое может возбуждать один нанокристалл кремния,  $N_{\text{nc}}$  — концентрация нанокристаллов, способных возбуждать эрбий. Таким образом, произведение  $nN_{\text{nc}}$  — это полная концентрация эрбия, способного возбуждаться через нанокристаллы. Обработка экспериментальных данных, представленных на рис. 3 (кривая *a*), с  $\sigma_{\text{eff}} = 8.7 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$  показана на рис. 3 сплошной линией. Полученное значение эффективного сечения  $\sigma_{\text{eff}}$  при импульсном возбуждении эрбия через нанокристаллы близко к сечению возбуждения нанокристаллов  $\approx 1 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$ , что свидетельствует о высокой его эффективности. Концентрация эрбия, который может возбуждаться через нанокристаллы в образце № 2, насыщается на уровне  $\approx 4.5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

Полученное значение насыщения концентрации возбужденного эрбия заметно меньше концентрации нанокристаллов в образце № 2 ( $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). Это дает основание предполагать, что один нанокристалл при

импульсной накачке непосредственно возбуждает только один ион эрбия. Таким образом, полученное значение насыщения концентрации возбужденного эрбия соответствует концентрации нанокристаллов, способных передавать энергию ионам эрбия. При непрерывной накачке, когда имеет место процесс передачи возбуждения от одного иона эрбия другому, концентрация возбужденного эрбия в образец № 2 насыщается на уровне  $\approx 1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , что значительно больше, чем при импульсной накачке.

## 4. Заключение

Мы исследовали возбуждение ионов эрбия в матрице  $\text{SiO}_2$ , включающей нанокристаллы кремния, при резонансной и нерезонансной импульсной накачке с длительностью импульса  $5 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ . Эффективное сечение возбуждения эрбия при импульсной накачке  $\sigma_{\text{eff}} \approx 8.7 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ , что близко к сечению возбуждения нанокристаллов.

Наши результаты показали, что, хотя введение нанокристаллов в матрицу  $\text{SiO}_2$  приводит к сильному увеличению эффективности возбуждения эрбия, концентрация оптически активного эрбия заметно снижается. Кроме того, далеко не все нанокристаллы кремния в матрице  $\text{SiO}_2$  являются оптически активными, т.е. способными возбуждать эрбий. По нашим оценкам время передачи возбуждения от одного иона эрбия другому значительно больше, чем время жизни экситонов в нанокристаллах и время передачи возбуждения от Si-nc иону эрбия.

## Список литературы

- [1] G. Franzo, F. Priolo, V. Vinciguerra. Appl. Phys. A **69**, 3 (1999).
- [2] F. Priolo, G. Franzo, D. Pacifici, V. Vinciguerra, F. Iacona, A. Irrera. J. Appl. Phys. **89**, 1, 264 (2001).
- [3] P.G. Kik, A. Polman. J. Appl. Phys. **88**, 4, 1992 (2000).
- [4] D. Pacifici, G. Franzo, F. Priolo, F. Iacona, L.D. Negro. Phys. Rev. B **67**, 245 301 (2003).
- [5] M. Forcales, M. Wojdak, M.A. Klik, T. Gregorkiewicz, O.B. Gusev, G. Franzo, D. Pacifici, F. Priolo, F. Iacona. Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **770**, 16.9.1 (2003).
- [6] W.J. Miniscalco. J. Lightwave Technol. **9**, 234 (1991).