Особенности механизмов возбуждения эрбиевой фотолюминесценции в эпитаксиальных структурах Si: Er/Si

© А.Н. Яблонский[¶], Б.А. Андреев, Л.В. Красильникова, Д.И. Крыжков, В.П. Кузнецов^{*}, З.Ф. Красильник

Институт физики микроструктур Российской академии наук,

603950 Нижний Новгород, Россия

* Научно-исследовательский физико-технический институт Нижегородского государственного университета, 603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 8 апреля 2010 г. Принята к печати 8 апреля 2010 г.)

Проведено исследование спектров возбуждения и кинетики эрбиевой фотолюминесценции, а также межзонной фотолюминесценции кремния в эпитаксиальных структурах Si:Er/Si в условиях интенсивного импульсного оптического возбуждения. Показано, что в спектрах межзонной фотолюминесценции в структурах Si:Er/Si в зависимости от мощности и длины волны возбуждающего излучения может наблюдаться как люминесценция свободных экситонов, так и сигнал, связанный с образованием электронно-дырочной плазмы. Обнаружено, что возникновение пика в спектрах возбуждения эрбиевой фотолюминесценции при большой мощности излучения накачки коррелирует с наблюдением перехода Мотта "экситонный газ—электронно-дырочная плазма". Продемонстрировано существенное влияние концентрации неравновесных носителей заряда в структурах Si:Er/Si на характерные времена нарастания эрбиевой фотолюминесценции.

1. Введение

Кремний, легированный эрбием, привлекает к себе значительное внимание в связи с тем, что длина волны излучательного перехода ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ в 4f-оболочке иона Er³⁺ лежит в спектральной области максимальной прозрачности кварцевых волоконно-оптических линий связи ($\lambda \approx 1.54$ мкм). Несмотря на большое число исследований, механизмы возбуждения ионов эрбия через электронную подсистему кремния, а также температурного гашения эрбиевой фотолюминесценции (ФЛ) в структурах Si: Er/Si до сих пор изучены недостаточно. Ранее нами было показано [1-3], что в эпитаксиальных сктукрутах Si:Er/Si в условиях интенсивного импульсного оптического возбуждения сигнал эрбиевой ФЛ наблюдается как при межзонной накачке, так и при энергиях кванта возбуюдающего излучения, существенно меньших ширины запрещенной зоны кремния $(hv_{\rm ex} < E_g)$ вплоть до энергии излучательного перехода ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ иона Er^{3+} (~ 0.8 эВ). При увеличении мощности оптической накачки в спектрах возбуждения эрбиевой ФЛ (т.е. в зависимости интенсивности эрбиевой ФЛ от длины волны возбуждающего излучения) появляется пик вблизи края межзонного поглощения кремния с максимумом на длине волны 1030 нм (1.204 эВ). Мы предположили, что эффект связан с переходом электрона из валентной зоны на донорные уровни с последующей передачей энергии во внутреннюю оболочку иона эрбия. Особенность такого процесса состояла в отсутствии свободных носителей и уменьшении оже-девозбуждения ионов эрбия [3]. В работе [4] предположение об участии донорного уровня, относящегося к эрбию, в процессе возбуждения фотолюминесценции было описано как резонансное возбуждение иона Er³⁺

с участием экситона, связанного на донорном уровне, и фонона, а также были получены данные о существовании донорного уровня с энергией $E_{\rm C} - 0.218$ эВ. Необходимость дальнейшего исследования наблюдаемого эффекта связана со следующими обстоятельствами:

— наличие пика в спектре возбуждения эрбиевой ФЛ указывает на важное для практических применений значительное увеличение эффективности при подзонном $(hv_{ex} < E_g)$ возбуждении эрбия;

— обе интерпретации эффекта не объясняют пороговый характер возникновения и существенное возрастание ширины пика в спектре возбуждения эрбиевой ФЛ при увеличении мощности оптической накачки.

Цель настоящей работы состоит в исследовании спектров возбуждения и кинетики эрбиевой ФЛ и межзонной ФЛ кремния в эпитаксиальных структурах Si : Er/Si и уточнении на основе экспериментальных данных модели возбуждения ФЛ ионов эрбия в кремнии.

2. Эксперимент

Структуры Si:Er/Si были выращены методом сублимационной молекулярно-лучевой эпитаксии (СМЛЭ) на подложках Si *p*-типа (4.5 Ом·см) [5,6]. Экспериментальные данные, приводимые в этой работе, получены для структуры, выращенной при T = 580 K, спектр ФЛ которой характерен для ионов эрбия, находящихся в SiO₂-подобных преципитатах в кремнии. Толщина эпитаксиального слоя Si:Er составляла ~ 5 мкм. Структуры возбуждались импульсным излучением параметрического генератора света MOPO-SL ("Spectra-Physics") с накачкой лазером Nd:YAG. Длина волны возбуждающего излучения перестраивалась в широком спектральном диапазоне ($\lambda_{ex} = 950-1400$ нм). Диаметр пучка возбуждающего излучения составляла ~ 2 мм, мощность воз

[¶] E-mail: yablonsk@ipm.sci-nnov.ru

буждающего излучения — 0.5-30 мВт. Сигнал ФЛ регистрировался с помощью решеточного монохроматора Acton 2300i, ФЭУ на основе InP/InGaAs Hamamatsu (спектральный диапазон 930–1700 нм, время отклика ~ 2 нс) и цифрового осциллографа LeCroy. Временное разрешение системы определялось длительностью импульса возбуждающего лазерного излучения и составляло ~ 5 нс. Исследования ФЛ проводились в интервале температур T = 16-90 K с использованием гелиевого криостата замкнутого цикла Leybold RGD 12/45.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены спектры возбуждения эрбиевой ФЛ при различных значениях мощности оптической накачки. Регистрация сигнала ФЛ осуществлялась на длине волны 1537 нм, вблизи наиболее интенсивной линии ФЛ перехода ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$ иона Er^{3+} . Как видно



Рис. 1. Спектры возбуждения эрбиевой $\Phi \Pi$ в структуре Si:Er/Si при различной мощности оптической накачки. T = 77 К. Пунктирной линией отмечена энергия, соответствующая краю оптического поглощения кремния.



Рис. 2. Нормированные спектры возбуждения эрбиевой ФЛ при различных температурах измерения, мощность возбуждающего излучения — 7 мВт.

из рисунка, при большой мощности оптической накачки возбуждение ФЛ ионов эрбия может осуществляться при энергиях кванта, существенно меньших ширины запрещенной зоны кремния. Высокочастотный край пика, наблюдаемого в спектрах возбуждения эрбиевой ФЛ при большой мощности накачки, соответствует энергии фотона: $hv_{ex} = E_g + hv_{ph}$, где $E_g = 1.17$ эВ ширина запрещенной зоны кремния, $hv_{\rm ph} \approx 0.06 \, {
m sB}$ энергия фонона, участвующего в непрямом переходе. Таким образом, падение интенсивности эрбиевой ФЛ в области 1.20-1.25 эВ совпадает с краем собственного поглощения в кремнии, приводящего к генерации свободных носителей. При увеличении температуры от 16 до 92К происходит уширение пика, и его высокоэнергетический край смещается в область меньших энергий на величину ~ 10 мэВ, что совпадает с температурным изменением ширины запрещенной зоны кремния (рис. 2). Приведенные результаты указывают на связь наблюдаемого эффекта (пика в спектре возбуждения эрбиевой ФЛ) с процессами генерации носителей при непрямых межзонных переходах в кремнии. В связи с этим представляет интерес наблюдение спектров излучательной релаксации в кремнии (межзонной ФЛ) при интенсивном импульсном возбуждении ФЛ, прежде всего ФЛ экситонов, учитывая их важную роль в процессе передачи энергии от электронной подсистемы кремния иону Er [7]. Поэтому в данной работе наряду с исследованием эрбиевой ФЛ было проведено детальное исследование спектров и кинетики межзонной ФЛ, наблюдаемой при тех же условиях оптического возбуждения.

В спектре межзонной ФЛ кремния, приведенной на рис. 3, доминирует линия излучения, соответствующая рекомбинации с испусканием ТО-фонона [8]. При малой мощности возбуждающего излучения (< 1 мВт) спектр межзонной ФЛ имеет форму, соответствующую линии рекомбинации свободных экситонов, и описывается формулой [9]

$$I(\nu) \propto \sqrt{h\nu - E_0} \exp[-(h\nu - E_0)/kT],$$

где I(v) — интенсивность на частоте v, E_0 — низкочастотный край экситонной ФЛ, Т — температура измерения. С увеличением мощности оптической накачки в спектре межзонной ФЛ возникает низкоэнергетическое плечо (рис. 3, a), время спада которого, как показывают кинетические измерения, существенно короче времени спада ФЛ свободных экситонов. Как было показано в работах [10,11], возникновение низкоэнергетического плеча в спектре межзонной ФЛ кремния связано с образованием электронно-дырочной плазмы (ЭДП) и электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) при низких температурах T < 25 K, возникающих при высокой концентрации носителей заряда. Согласно [10], переход Мотта в системе "экситонный газ-ЭДП" в кремнии происходит при концентрации генерируемых носителей $n = 1.5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \ (T = 77 \text{ K}).$



Рис. 3. Нормированные спектры межзонной ФЛ в структуре Si: Er/Si: a — при различной энергии оптической накачки (мДж), длина волны возбуждения — 960 нм (1.29 эВ); b — при различных энергиях квантов накачки, мощность накачки — 7 мВт. T = 77 К.

Следует отметить, что возникновение низкоэнергетического плеча наблюдалось нами как с увеличением мощности оптической накачки при фиксированной длине волны возбуждающего излучения (в условиях межзонного возбуждения), рис. 3, а, так и с уменьшением длины волны возбуждения в области 1060-960 нм (1.17-1.29 эВ) при постоянной высокой мощности оптической накачки (рис. 3, b). В этом случае увеличение концентрации генерируемых носителей заряда связано с резким возрастанием межзонного поглощения в кремнии в указанном спектральном диапазоне. Оценка концентрации электронно-дырочных пар, соответствующей возникновению низкоэнергетического плеча, дает величину $\sim 2 \cdot 10^{17} \, \mathrm{cm}^{-3}$. Это значение хорошо согласуется с концентрацией, соответствующей переходу Мотта в системе "экситонный газ-ЭДП" [10,11].

Сопоставление эрбиевой и межзонной ФЛ показывает, что появление пика в спектрах возбуждения эрбиевой ФЛ (возрастание интенсивности в интервале 980–1030 нм (1.25–1.20 эВ), наблюдаемое при большой мощности оптической накачки) коррелирует с перехо-

6

дом Мотта от режима генерации свободных экситонов к образованию электронно-дырочной плазмы. При малой мощности оптического возбуждения режим генерации экситонов (свободных и связанных на донорных центрах, относящихся к эрбию) реализуется во всем спектральном диапазоне излучения накачки. При этом пик в спектре возбуждения эрбиевой ФЛ не наблюдается. Возникновение пика в спектрах возбуждения эрбиевой ФЛ связано, по-видимому, с резким снижением эффективности возбуждения ионов Ег в режиме генерации электронно-дырочной плазмы, при котором эффективный экситонный механизм возбуждения эрбия исключен.

Определенные доказательства справедливости этого предположения дают кинетики нарастания эрбиевой ФЛ. Обнаружено (рис. 4), что в условиях межзонного возбуждения (1.29 эВ) при малой мощности оптической накачки наблюдается чрезвычайно быстрое нарастание сигнала эрбиевой ФЛ с характерным временем менее 10 нс (предел временного разрешения при регистрации сигнала). При увеличении мощности возбуждения возникает относительно медленная компонента нарастания эрбиевой ФЛ с характерным временем ~ 1 мкс,



Рис. 4. Кинетика нарастания эрбиевой ФЛ: *а* — на длине волны возбуждения 960 нм (1.29 эВ) при мощности оптической накачки 0.5 (*1*) и 30 мВт (*2*); *b* — при большой мощности оптической накачки (30 мВт) на различных длинах волн возбуждающего излучения: *1* — 960, *2* — 1030 и *3* — 1200 нм.

вклад которой становится преобладающим при максимальной мощности накачки (рис. 4, а). Аналогичное поведение (переход от быстрого времени нарастания эрбиевой ФЛ к медленному) наблюдается для большой постоянной мощности возбжудения при переходе от подзонного возбуждения ($h\nu_{\rm ex} < E_g$) к межзонному (рис. 4, b). В обоих случаях быстрое и медленное время нарастания эрбиевой ФЛ соответствуют режимам генерации свободных экситонов и образованию электронно-дырочной плазмы соответственно. Медленное нарастание эрбиевой ФЛ в условиях образования электронно-дырочной плазмы может быть связано с процессами снижения концентрации неравновесных носителей заряда до величины ниже перехода Мотта (сотни наносекунд, согласно [11]) и диффузии носителей заряда и экситонов, рождающихся в кремниевой подложке, в активный слой Si: Er с последующим возбуждением ионов эрбия.

4. Заключение

В данной работе проведено исследование спектров возбуждения и кинетики эрбиевой ФЛ, а также межзонной ФЛ кремния в эпитаксиальных структурах Si: Er/Si в условиях интенсивного импульсного оптического возбуждения. В результате исследования спектров межзоной ФЛ обнаружено возникновение электронно-дырочной плазмы в структурах Si: Er/Si при большой мощности межзонной оптической накачки. Показано, что условия образования электронно-дырочной плазмы в структурах Si: Er/Si соответствуют возникновению пика вблизи края запрещенной зоны кремния в спектрах возбуждения эрбиевой ФЛ. Продемонстрировано существенное влияние концентрации неравновесных носителей заряда в структурах Si: Er/Si на характерные времена нарастания эрбиевой ФЛ.

Работа поддержана программами РАН, грантами РФФИ (№ 08-02-01063, 09-02-00898).

Список литературы

- Б.А. Андреев, Т. Gregorkiewicz, М.А.J. Klik, З.Ф. Красильник, Д.И. Крыжков, В.П. Кузнецов, А.Н. Яблонский. ФТТ, 46 (1), 98 (2004).
- [2] A.N. Yablonskiy, M.A.J. Klik, B.A. Andreev, V.P. Kuznetsov, Z.F. Krasilnik, T. Gregorkiewicz. Optical Mater., 27 (5), 890 (2005).
- [3] Б.А. Андреев, З.Ф. Красильник, А.Н. Яблонский, В.П. Кузнецов, Т. Gregorkiewicz, М.А.J. Klik. ФТТ, 47 (1), 83 (2005).
- [4] I. Izeddin, M.A.J. Klik, N.Q. Vinh, M.S. Bresler, T. Gregorkiewicz. Phys. Rev. Lett., 99, 077 401 (2007).
- [5] В.П. Кузнецов, Р.А. Рубцова. ФТП, 34 (5), 519 (2000).
- [6] А.Ю. Андреев, Б.А. Андреев, М.Н. Дроздов, В.П. Кузнецов, З.Ф. Красильник, Ю.А. Карпов, Р.А. Рубцова, М.В. Степихова, Е.А. Ускова, В.Б. Шмагин, Н. Ellmer, L. Palmetshofer, K. Piplits, Н. Hutter. ФТП, **33** (2), 156 (1999).

- [7] М.С. Бреслер, О.Б. Гусев, И.П. Захарченя, И.Н. Яссиевич. ФТТ, 38, 1474 (1996).
- [8] G. Davies. Reports (Reviev Section of Physics Letters), 176, 83 (1989).
- [9] G.S. Mitchard, T.C. Mc Gill. Phys. Rev. B, 25, 5351 (1981).
- [10] J. Shah, M. Combescot, A.H. Dayem. Phys. Rev. Lett., 38, 1497 (1977).
- [11] L.M. Smith, J.P. Wolfe. Phys. Rev. B, 51, 7521 (1995).

Редактор Л.В. Беляков

Peculiarities of erbium photoluminescence excitation in epitaxial Si:Er/Si structures

A.N. Yablonskiy, B.A. Andreev, L.V. Krasilnikova, D.I. Kryzhkov, V.P. Kuznetsov*, Z.F. Krasilnik

Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia * Physical Technical Research Institute, University of Nizhny Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract Photoluminescence excitation spectra and kinetics of erbium ions, as well as band-to-band photoluminescence of silicon has been studied in epitaxial Si:Er/Si structures under intense pulse optical pumping. Both signals related to free excitons and to electron-hole plasma can be observed in the photoluminescence spectra depending on power and wavelength of the pumping light. Correlation between appearance of the peak in the photoluminescence excitation spectra of erbium ions and realization of Mott transition "free excitons—electron-hole plasma" in the Si:Er/Si structures has been revealed. Considerable influence of the concentration of non-uniform photo-generated carried on the rise time of erbium photoluminescence has been observed.