Механизм подзонного возбуждения фотолюминесценции ионов эрбия в кремнии в условиях интенсивной оптической накачки

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

Институт физики микроструктур Российской академии наук,

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

(Получена 25 апреля 2012 г. Принята к печати 25 апреля 2012 г.)

Проведено исследование спектров возбуждения фотолюминесценции эрбия, а также межзонной фотолюминесценции кремния в эпитаксиальных структурах Si :Er/Si в условиях интенсивного импульсного оптического возбуждения. Показано, что немонотонная зависимость интенсивности фотолюминесценции от длины волны излучения накачки λ_{ex} вблизи края межзонного поглощения кремния связана с неоднородностью оптического возбуждения активного слоя Si :Er. Резкое возрастание интенсивности фотолюминесценции эрбия в спектральном диапазоне $\lambda_{ex} = 980-1030$ нм связано с увеличением возбуждаемой области излучающего слоя Si :Er при переходе к подзонному излучению накачки ($\lambda_{ex} > 980$ нм) с малым коэффициентом поглощения в кремнии вследствие эффективного распространения возбуждающего излучения в объеме исследуемых структур. Показано, что при подзонной оптической накачке структур Si :Er/Si, как и в случае межзонной накачки, реализуется экситонный механизм возбуждения ионов эрбия. Генерация экситонов в указанных условиях осуществляется в результате двухступенчатого процесса поглощения с участием примесных состояний в запрещенной зоне кремния.

1. Введение

Кремний, легированный эрбием, привлекает значительное внимание в связи с тем, что длина волны излучательного перехода ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ в 4f-оболочке иона ${\rm Er}^{3+}$ ($\lambda \approx 1.54$ мкм) является оптимальной для распространения излучения как в кремнии, так и кварцевых волоконно-оптических линиях связи. Несмотря на большое число исследований [1,2], механизмы возбуждения ионов эрбия через электронную подсистему кремния, а также девозбуждения фотолюминесценции (ФЛ) эрбия в структурах Si: Er/Si до сих пор остаются недостаточно изученными. Достижение практически значимого усиления и лазерной генерации в кремниевых структурах, легированных эрбием, на длине волны 1.54 мкм связано с созданием инверсной населенности для излучательного перехода иона эрбия. В связи с этим особенно важным является исследование оптических свойств Si: Er-структур в условиях интенсивного возбуждения, необходимого для достижения инверсной населенности. Целью настоящей работы являлось исследование спектров возбуждения ФЛ эрбия и межзонной ФЛ кремния в эпитаксиальных структурах Si: Er/Si, Si: Er/SOI (SOI silicon-on-insulator) и уточнение на основе полученных экспериментальных данных модели возбуждения ФЛ ионов эрбия в кремнии.

2. Эксперимент

Структуры Si:Er/Si и Si:Er/SOI были выращены методом сублимационной молекулярно-лучевой эпитаксии (СМЛЭ) [3–5] на подложках Si *p*-типа проводимости

(удельное сопротивление 4.5 и 18 Ом · см соответственно). Температура роста структур составляла 500-600°С, толщина эпитаксиального слоя Si: Er равнялась 1-5 мкм. Структуры возбуждались импульсным излучением параметрического генератора света MOPO-SL "Spectra-Physics" с накачкой импульсным лазером Nd:YAG. При исследовании спектров возбуждения ФЛ длина волны возбуждающего излучения перестраивалась в широком спектральном диапазоне ($\lambda_{ex} = 800 - 1500$ нм). Сигнал ФЛ измерялся с помощью решеточного монохроматора Acton 2300i, фотоэлектронного умножителя Hamamatsu на основе InP/InGaAs (диапазон чувствительности 930–1700 нм, время отклика $\sim 2 \, {\rm hc})$ и цифрового осциллографа LeCroy. Фотолюминесценция эрбия регистрировалась на длине волны 1535 нм, соответствующей основному излучательному переходу иона эрбия ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$. Временное разрешение системы определялось длительностью импульса возбуждающего лазерного излучения и составляло ~ 5 нс. Исследования ФЛ проводились при температуре жидкого азота $(T = 77 \, \text{K}).$

3. Результаты и обсуждение

Ранее нами было обнаружено [6–8], что в эпитаксиальных структурах Si:Er/Si, а также в структурах Si:Er/SOI и SiGe:Er/Si в условиях интенсивного импульсного оптического возбуждения сигнал ФЛ ионов эрбия наблюдается как при межзонной накачке, так и при возбуждении структур излучением с энергиями фотона, существенно меньшими ширины запрещенной зоны кремния $E_g(Si)$ (подзонное возбуждение). При высокой плотности мощности оптической накачки в спектральной области, соответствующей краю межзон-

⁶⁰³⁹⁵⁰ Нижний Новгород, Россия

[¶] E-mail: yablonsk@ipm.sci-nnov.ru



Рис. 1. Спектры возбуждения фотолюминесценции (PL) эрбия в структуре Si: Er/Si при различной мощности оптической накачки. T = 77 K. Пунктирной вертикальной линией отмечен край межзонного поглощения в кремнии. $\hbar\Omega_{\rm ph}$ — энергия оптического фонона.

ного поглощения кремния (980-1030 нм), наблюдалось резкое возрастание интенсивности ФЛ эрбия с увеличением длины волны возбуждения, и в спектрах возбуждения ФЛ возникал пик с максимумом на длине волны $\lambda_{ex} = 1030$ нм (рис. 1). Наблюдение данного пика в спектрах возбуждения ФЛ эрбия связывалось нами ранее с резким возрастанием безызлучательного девозбуждения ионов эрбия при увеличении концентрации свободных носителей заряда [7,8] и со снижением эффективности экситонного механизма возбуждения ионов эрбия вследствие генерации электронно-дырочной плазмы [9] при переходе от подзонного к межзонному оптическому возбуждению. В работах других авторов для объяснения этого эффекта предлагались модели резонансного возбуждения иона эрбия через экситоны, связанные на глубоком донорном уровне [10], или нерезонансного возбуждения через виртуальный оже-процесс [11]. Предложенные гипотезы относительно природы возникновения пика не согласовались, однако, с рядом полученных экспериментальных результатов, что послужило причиной проведения дальнейших исследований.

Наблюдаемая в эксперименте зависимость интенсивности пика от размеров образца и пятна фокусировки возбуждающего излучения позволила связать появление пика в спектре возбуждения ФЛ эрбия с увеличением области активного слоя Si: Er, возбуждаемой при энергиях кванта, меньших ширины запрещенной зоны кремния, когда кремниевая подложка становится практически прозрачной для возбуждающего излучения. В этом случае излучение накачки может эффективно распространяться в объеме исследуемой структуры вследствие многократного отражения от границ образца и возбуждать ионы эрбия в областях активного слоя Si: Er, расположенных вне пятна фокусировки лазерного излучения.

Данное предположение было подтверждено в следующем эксперименте. Поверхность исследуемого образца Si:Er/Si размером 10 × 10 мм закрывалась алюминиевой фольгой как со стороны активного слоя, так и со стороны подложки. С обеих сторон образца в фольге были сделаны отверстия размером 1 × 1 мм, разнесенные друг относительно друга на расстояние ~ 10 мм (см. вставку к рис. 2). На одно из отверстий направлялся луч возбуждающего излучения, второе отверстие служило для вывода и регистрации сигнала ФЛ. Особенность описанной схемы измерения состоит в том, что сигнал ФЛ в этой схеме может быть зарегистрирован только в результате распространения возбуждающего излучения или излучения ионов эрбия внутри исследуемой структуры Si: Er/Si на расстояние ~ 10 мм. Разнесение "входной" и "выходной" апертур на указанное расстояние позволяет исключить из рассмотрения возможность диффузии носителей заряда из области возбуждения в область регистрации сигнала ФЛ. На рис. 2 приведены зависимости интенсивности ФЛ эрбия от длины волны возбуждающего излучения (спектры возбуждения ФЛ), измеренные при возбуждении со стороны активного слоя Si: Er (конфигурация 1) и со стороны подложки Si (конфигурация 2).

При возбуждении структуры межзонным излучением $(\lambda_{ex} = 800-980 \text{ нм})$ генерация носителей заряда и возбуждение ионов эрбия могут осуществляться только вблизи входной апертуры. Наблюдение заметного сигнала эрбиевой ФЛ при возбуждении в данной области спектра свидетельствует об эффективном распространении излучения ионов эрбия (на длине волны 1535 нм) из области возбуждения до выходной апертуры. Отметим, что в конфигурации 2, т.е. при возбуждении со стороны подложки, возбуждение ионов эрбия в случае межзонной накачки происходит вследствие диффузии носителей заряда на расстояние, определяемое толщиной кремниевой подложки (~ 400 мкм), а также глубиной проникновения излучения в структуру. Поэтому с увеличением



Рис. 2. Спектры возбуждения эрбиевой фотолюминесценции (PL) в структуре Si:Er/Si, полученные в схеме с двумя апертурами, при возбуждении со стороны активного слоя Si:Er (1) и со стороны подложки Si (2). T = 77 K. На вставке — схема эксперимента.

Физика и техника полупроводников, 2012, том 46, вып. 11



Рис. 3. Спектры возбуждения фотолюминесценции (PL) эрбия в структуре Si:Er/Si при высокой мощности оптической накачки (30 мBт): I — структура 10 × 10 мм, размер пятна возбуждения ~ 2 мм; 2 — размер образца 2 × 2 мм, однородное возбуждение всей поверхности активного слоя Si:Er. T = 77 K.

длины волны возбуждения (т. е. глубины проникновения излучения накачки в структуру) в области 800–980 нм наблюдается монотонное возрастание интенсивности эрбиевой ФЛ.

Резкое (более чем на порядок) возрастание сигнала ФЛ эрбия при возбуждении в области 980–1030 нм по сравнению с областью межзонной накачки свидетельствует о том, что в условиях подзонного возбуждения излучение накачки эффективно распространяется в структуре Si:Er/Si и возбуждает ионы эрбия как вблизи "входной" апертуры, так и в остальной области активного слоя Si:Er. Аналогичный эффект приводит к возникновению пика в спектрах возбуждения ФЛ эрбия при стандартной схеме измерения (возбуждение и регистрация сигнала ФЛ со стороны активного слоя Si:Er), если возбуждающее излучение засвечивает небольшую часть поверхности исследуемой структуры, особенно в случае фокусировки пучка возбуждающего излучения.

Для подтверждения сделанного вывода из образца Si: Er/Si был выколот чип размером 2 × 2 мм, что позволило измерить спектр возбуждения эрбиевой ФЛ при однородной засветке всей поверхности активного слоя Si: Er без снижения плотности мощности (P) возбуждающего излучения. Полученный спектр возбуждения приведен на рис. 3 (кривая 2). Как видно из рисунка, при возбуждении всей площади активного слоя наблюдается монотонное падение интенсивности ФЛ эрбия с ростом длины волны излучения накачки и пик в спектре возбуждения ФЛ отсутствует. Также для подтверждения предложенной гипотезы был проведен расчет спектров возбуждения ФЛ эрбия для случая однородной засветки и засветки части структуры Si: Er/Si. При моделировании в случае неоднородного возбуждения предполагалось, что сигнал ФЛ равен сумме сигналов из пятна возбуждения и из "темной", неосвещенной, части образца. Вторая составляющая сигнала ФЛ возбуждается излучением,

Физика и техника полупроводников, 2012, том 46, вып. 11

прошедшим через кремниевую подложку и отраженным от обратной (неосвещенной) стороны образца. В расчете использовались измеренная зависимость сигнала ФЛ І от плотности мощности оптической накачки и известная зависимость коэффициента поглощения кремния от длины волны излучения [12]. На рис. 4, а приведены спектры возбуждения, рассчитанные при нескольких значениях мощности Р оптического возбуждения. Полученные зависимости $I(\lambda_{ex})$ хорошо описывают эффект возникновения пика в спектрах возбуждения ФЛ эрбия вблизи края межзонного поглощения кремния при неоднородном оптическом возбуждении структур Si: Er/Si. В то же время в аналогичных зависимостях $I(\lambda_{ex})$, рассчитанных для случая возбуждения всей поверхности структуры Si: Er/Si (рис. 4, b), наблюдается монотонное изменение интенсивности с ростом λ_{ex} во всем спектральном диапазоне возбуждающего излучения.

Для установления механизма возбуждения ФЛ эрбия в условиях подзонной оптической накачки было проведено сравнительное исследование спектров возбуждения эр-



Рис. 4. Рассчитанные спектры возбуждения фотолюминесценции (PL) эрбия в структуре Si: Er/Si при различных значениях мощности накачки (P_{max} — максимальная мощность): a — неоднородное возбуждение, размер образца 10 мм, пятно возбуждения 2 мм; b — размер образца 2 мм, однородное возбуждение поверхности структуры.



Рис. 5. Спектр экситонной фотолюминесценции (PL) в структуре Si: Er/Si в условиях подзонного оптического возбуждения ($\lambda_{ex} = 1300$ нм). На вставке — зависимость интенсивности экситонной ФЛ от мощности возбуждающего излучения. E_{ex} — энергия связи экситона, $\hbar\Omega_{ph}$ — энергия фонона.

биевой и межзонной (экситонной) ФЛ. Было обнаружено, что, несмотря на резкое падение интенсивности экситонной ФЛ при энергиях фотонов $hv_{\rm ex} < E_g$, генерация экситонов в структурах Si: Er/Si осуществляется и при подзонном оптическом возбуждении. На рис. 5 приведен спектр межзонной ФЛ кремния, полученный при длине волны возбуждения $\lambda_{ex} = 1300$ нм, т.е. существенно ниже края запрещенной зоны кремния. Полученный спектр ФЛ соответствует излучательной рекомбинации свободных экситонов в кремнии с испусканием ТО-фонона [13]. Соотношение интенсивностей эрбиевой и экситонной ФЛ, полученное при межзонном и подзонном возбуждении, свидетельствует о том, что возбуждение ионов эрбия в кремнии при подзонной оптической накачке осуществляется, как и в случае межзонного возбуждения, вследствие генерации в исследуемых структурах свободных электронно-дырочных пар (экситонов). Генерация экситонов в указанных условиях осуществляется, по-видимому, в результате двухступенчатого процесса поглощения с участием глубоких примесных состояний в запрещенной зоне кремния, что подтверждается сверхлинейной зависимостью интенсивности экситонной ФЛ от мощности возбуждающего излучения (см. вставку к рис. 5).

4. Заключение

Показано, что немонотонная зависимость интенсивности ФЛ от длины волны возбуждающего излучения вблизи края межзонного поглощения кремния связана с неоднородностью оптического возбуждения активного слоя Si:Er. Резкое возрастание интенсивности ФЛ эрбия в спектральном диапазоне возбуждения $\lambda_{ex} = 980-1030$ нм связано с увеличением области излучающего слоя Si:Er, возбуждаемой при энергиях

кванта, меньших ширины запрещенной зоны кремния, вследствие значительного снижения поглощения излучения в кремниевой подложке. В этом случае излучение накачки эффективно распространяется в объеме исследуемой структуры вследствие многократного отражения от границ образца и возбуждает ионы эрбия в области активного слоя Si: Er, расположенной вне пятна фокусировки лазерного излучения. Показано, что при подзонной оптической накачке структур Si: Er/Si, как и в случае межзонной накачки, реализуется экситонный механизм возбуждения ионов эрбия. Генерация экситонов в указанных условиях осуществляется в результате двухступенчатого процесса поглощения с участием примесных состояний в запрещенной зоне кремния.

Работа поддержана грантами РФФИ, программами РАН и Министерства образования и науки РФ (ГК 16.518.11.7018).

Список литературы

- [1] A. Polman. J. Appl. Phys., 82, 1 (1997).
- [2] A.J. Kenyon. Semicond. Sci. Technol., 20, R65 (2005).
- [3] В.П. Кузнецов, Р.А. Рубцова. ФТП, 34, 519 (2000).
- [4] Б.А. Андреев, А.Ю. Андреев, Д.М. Гапонова, З.Ф. Красильник, А.В. Новиков, М.В. Степихова, В.Б. Шмагин, В.П. Кузнецов, Е.А. Ускова, S. Lanzerstorfer. Изв. АН. Сер. физ., 64, 269 (2000).
- [5] 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).
- [6] 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).
- [7] A.N. Yablonskiy, M.A.J. Klik, B.A. Andreev, V.P. Kuznetsov, Z.F. Krasilnik, T. Gregorkiewicz. Optical Mater., 27 (5), 890 (2005).
- [8] Б.А. Андреев, З.Ф. Красильник, А.Н. Яблонский, В.П. Кузнецов, Т. Gregorkiewicz, М.А.J. Klik. ФТТ, 47 (1), 83 (2005).
- [9] А.Н. Яблонский, Б.А. Андреев, Л.В. Красильникова, Д.И. Крыжков, В.П. Кузнецов, З.Ф. Красильник. ФТП, 44 (11), 1519 (2010).
- [10] I. Izeddin, M.A.J. Klik, N.Q. Vinh, M.S. Bresler, T. Gregorkiewicz. Phys. Rev. Lett., 99, 077 401 (2007).
- [11] I.N. Yassievich. Optical Mater., **33** (7), 1079 (2011).
- [12] G.G. Macfarlane, T.P. McLean, J.E. Quarrington, V. Roberts. Phys. Rev., 111, 1245 (1958).
- [13] G. Davies. Phys. Reports (Rev. Section of Phys. Lett.), 176, 83 (1989).

Редактор Л.В. Шаронова

Mechanism of sub-band-gap excitation of erbium photoluminescence in silicon under intensive optical pumping

A.N. Yablonskiy, B.A. Andreev, D.I. Kryzhkov, V.P. Kuznetsov*, D.V. Shengurov, 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 of erbium ions, as well as band-to-band photoluminescence of silicon have been studied in epitaxial Si: Er/Si structures under intensive pulse optical pumping. It has been shown that nonmonotonic dependence of the erbium photoluminescence intensity on the excitation wavelength near the interband absorption edge of silicon is connected with non-uniform optical excitation of the active Si:Er layer. The sharp increase in the intensity of erbium photoluminescence in the spectral excitation range $\lambda_{ex} = 980 - 1030$ nm is related to the increase of the excited region of the emitting Si: Er layer under subband-gap excitation $(\lambda_{ex} > 980\,nm)$ with low absorption coefficient in silicon due to the effective spreading of the pumping radiation in the bulk of the structures investigated. It is shown that under sub-band-gap excitation of the Si: Er/Si structures, as in the case of interband pumping, excitonic mechanism of erbium ions excitation is realized. The generation of excitons in these conditions is a result of a two-step absorption process involving the impurity states in the band gap of silicon.