

Фотолюминесценция тонких пленок аморфно-нанокристаллического кремния

© В.Г. Голубев, А.В. Медведев, А.Б. Певцов, А.В. Селькин, Н.А. Феоктистов

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

E-mail: alex@pevtsov.spb.su

(Поступила в Редакцию 22 мая 1998 г.)

Исследованы спектры фотолюминесценции тонких пленок гидрогенизированного кремния со смешанным аморфно-нанокристаллическим фазовым составом. Обнаружено сильное влияние интерференции Фабри–Перо на форму спектров. Анализ спектров, выполненный с учетом интерференционных поправок, показывает, что в области $0.6\text{--}1.0\ \mu\text{m}$ формируется только одна полоса излучения, обусловленная рекомбинацией носителей заряда на центрах одного и того же типа.

Оптические и электрические свойства наноразмерных полупроводниковых кристаллитов привлекают большое внимание, так как, с одной стороны, в таких объектах ярко проявляются квантово-размерные эффекты, а с другой стороны, эти материалы могут являться основой для разработки новых оптоэлектронных устройств [1,2]. В частности, обнаружение видимого интенсивного излучения при комнатной температуре из низкоразмерных кремниевых структур [3–5] открывает перспективы для создания излучающих инжекционных приборов, совместимых с оптоэлектронными интегральными схемами на основе кремния. Одним из типов наноразмерных объектов такого рода являются тонкие кремниевые пленки со смешанным аморфно-нанокристаллическим фазовым составом, полученные методом плазмохимического газофазного осаждения (Plasma Enhanced Chemical Vapour Deposition PE CVD [6–8]). Этот метод позволяет контролировать в широких пределах размеры кристаллитов и их объемную долю, малочувствителен к выбору подложек, хорошо совместим со стандартной кремниевой технологией.

Во многих экспериментальных работах отмечалось, что спектры фотолюминесценции (ФЛ) гетерофазных кремниевых пленок, как правило, содержат несколько полос излучения. Ряд авторов [9–14] связывает их с присутствием в пленках различных типов излучательных центров. Однако следует иметь в виду, что тонкая гидрогенизированная кремниевая пленка на полированной подложке по своим оптическим свойствам близка к эталону Фабри–Перо, поэтому в ней возможно возникновение интерференционных эффектов, оказывающих существенное влияние на форму спектров ФЛ [15]. При определенных соотношениях показателя преломления и толщины пленки количество интерференционных максимумов в исследуемой спектральной области может быть ограничено двумя-тремя широкими пиками, маскирующими истинный спектр ФЛ. Следовательно, при исследовании излучающих свойств подобных объектов в первую очередь необходимо исключить самую простую, интерференционную, причину возникновения дополнительной структуры в спектрах ФЛ.

1. Эксперимент

Выращивание пленок со смешанным аморфно-нанокристаллическим составом осуществлялось методом PE CVD. Для стимуляции процесса роста нанокристаллитов слои осаждались в условиях сильного разбавления ($> 95\%$) силана водородом. Полученные пленки обладали следующими параметрами: толщина $0.6\text{--}0.8\ \mu\text{m}$, показатель преломления $2.2\text{--}2.8$, коэффициент поглощения на длине волны $488\ \text{nm}$ возбуждающего аргонового лазера порядка $10^4\ \text{cm}^{-1}$, ширина запрещенной зоны $1.9\text{--}2.1\ \text{eV}$. Объемная доля кристаллитов и их средний диаметр определялись из численной обработки спектров рамановского рассеяния пленок и в зависимости от условий осаждения варьировались в пределах $0\text{--}40\%$ и $30\text{--}50\ \text{\AA}$ соответственно.

Измерения ФЛ проводились как при температуре жидкого азота, так и при комнатной температуре. Мощность лазерного излучения не превышала $40\ \text{mW}$. Спектры регистрировались с помощью монохроматора МДР-23. В качестве фотоприемника при регистрации ФЛ в области $0.6\text{--}1.0\ \mu\text{m}$ использовался фотоумножитель ФЭУ-62. Пропускание пленок регистрировалось в диапазоне $0.7\text{--}1.6\ \mu\text{m}$ германиевым фотодиодом.

Измерения ФЛ проводились так, что образец располагался пленкой к щели монохроматора, а возбуждающий лазерный луч направлялся со стороны кварцевой подложки. Затем при том же расположении образца регистрировался спектр оптического пропускания. Толщина и показатель преломления пленки определялись из интерференционной структуры спектра пропускания в инфракрасной области.

На рис. 1 приведен типичный спектр ФЛ (для направления излучения вдоль нормали к поверхности пленки) с учетом поправки на аппаратную функцию измерительной системы. Его характерной чертой является наличие нескольких максимумов. Причем положение этих максимумов находится в области ожидаемой ФЛ как от нанокристаллитов [16], так и от аморфной матрицы. Однако при сопоставлении между собой спектров ФЛ и пропускания обнаружилось совпадение по длинам

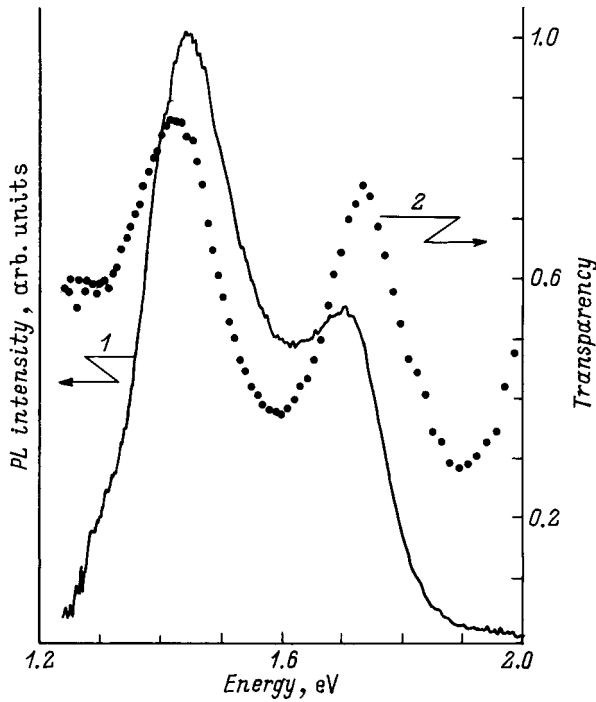


Рис. 1. Экспериментальный спектр ФЛ аморфно-нанокристаллической пленки (1) и спектр пропускания (2), измеренный в том же месте пленки, в котором регистрировался спектр излучения. $T = 77$ К.

волн экстремумов обоих спектров, что свидетельствует в пользу интерференционной природы многопиковой ФЛ. Таким образом, для определения истинного вида спектра ФЛ в первую очередь необходимо исключить его модуляцию интерференцией.

2. Теория

Проявление интерференции Фабри–Перо в спектрах излучения эпитаксиальных пленок (применительно к ZnSe) обсуждалось в работе [17], где было выведено также соответствующее выражение для интенсивности излучения из пленки. Вывод этого выражения в [17] основан на методе (см., например, [18], гл. 4) суммирования парциальных амплитуд электрического поля, многократно отраженных от границ слоя, примененном к случаю расположения источников поля внутри пленки. К сожалению, область применения формул работы [17] ограничена ситуациями, когда излучаемый свет распространяется к внутренней поверхности пленки почти нормально и можно пренебречь поглощением света на частоте излучения. Вместе с тем исследования спектров люминесценции при произвольных углах выхода излучения и в спектральной области, где поглощение света не является малым, также могут представлять интерес.

Непосредственное использование подхода [17] при получении более общего выражения для интенсивности излучения с учетом наклонного распространения света

в пленке невозможно, если неизвестны соотношения между амплитудами электрического поля на границах каждого элементарного излучающего слоя. Такие соотношения определяются ориентацией элементарных излучателей, которая может задаваться, например, вектором плотности стороннего поляризационного тока \mathbf{j} . Тогда задача об излучении света фактически сводится к нахождению электромагнитного поля на внешней (излучающей) поверхности пленки по заданному току \mathbf{j} внутри пленки, которые в свою очередь определяются источником внешнего возбуждения.

Будем исходить из системы уравнений Максвелла, записанной для частотных Фурье-компонент полей,

$$\text{rot } \mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega) = ik_0 \mathbf{B}(\mathbf{r}; \omega), \quad (1)$$

$$\text{rot } \mathbf{B}(\mathbf{r}; \omega) = -ik_0 \mathbf{D}(\mathbf{r}; \omega) + 4\pi/c \mathbf{j}(\mathbf{r}; \omega), \quad (2)$$

где \mathbf{E} — вектор напряженности электрического поля, а \mathbf{D} и \mathbf{B} — векторы электрической и магнитной индукций соответственно ($k_0 = \omega/c$ — волновой вектор света в вакууме, c — скорость света, ω — частота).

Рассмотрим решение этой системы для четырехслойной планарной структуры, схематически изображенной на рис. 2. В соответствии с условиями нашего эксперимента структура состоит из тонкой излучающей пленки $z_3 < z < z_2$ толщиной L_2 и толстой подложки $z_2 < z < z_1$ толщиной L_1 , которые заключены между прозрачными полубесконечными слоями $z > z_1$ и $z < z_3$. Будем обозначать диэлектрическую проницаемость слоя, расположенного слева (справа) от границы раздела z_j , через ϵ_j (ϵ_{j-1}), причем $\epsilon_3 = \epsilon_0$. При этом, согласно рис. 2, считается, что ось z перпендикулярна границам раздела исследуемой структуры, а излучение с частотой ω регистрируется под углом выхода φ в среду $z < z_3$ в направлении, лежащем в плоскости xz . В таком случае волновые векторы \mathbf{K} нормальных волн, вносящих вклад в излучение в рассматриваемой геометрии, имеют одинаковые для всех волн тангенциальные составляющие $K_y = 0$ и $K_x = \sqrt{\epsilon_0} k_0 \sin(\varphi)$.

Учитывая трансляционную симметрию задачи вдоль плоскости xy , удобно перейти путем преобразования Фурье в $(\mathbf{K}_{\parallel}, z; \omega)$ -представление полей, где $\mathbf{K}_{\parallel}(K_x, K_y)$ — двумерный волновой вектор в плоскости, параллельной границам раздела. Далее под величинами $\mathbf{F}(z)$

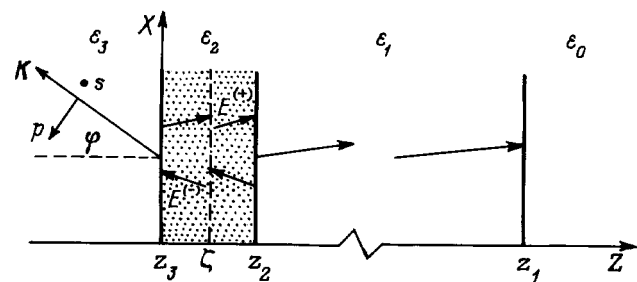


Рис. 2. Схематическое изображение исследуемой четырехслойной планарной структуры.

будем подразумевать амплитуды $\mathbf{F}(K_{||}, z; \omega)$ полей \mathbf{F} ($\mathbf{F} = \mathbf{E}, \mathbf{B}, \mathbf{D}, \mathbf{j}$) и рассматривать отклик $\tilde{\mathbf{F}}(z, \zeta)$ ($\tilde{\mathbf{F}} = \tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{B}}$) системы на сингулярный поляризационный ток $\mathbf{j}(\zeta) \cdot \delta(z - \zeta)$, локализованный в плоскости $z = \zeta$. Тогда под действием полного тока $\mathbf{j}(z) = \int d\zeta \mathbf{j}(\zeta) \delta(z - \zeta)$ в структуре возбуждается поле $\mathbf{F}(z) = \int d\zeta \tilde{\mathbf{F}}(z, \zeta)$.

Непосредственное интегрирование уравнений (1), (2) по толщине бесконечно тонкого слоя, содержащего плоскость $z = \zeta$ сингулярного тока, с учетом того, что тангенциальные составляющие полей \mathbf{E} и \mathbf{B} нигде не обращаются в бесконечность, дает систему граничных условий

$$\tilde{B}_y(\zeta + 0, \zeta) - \tilde{B}_y(\zeta - 0, \zeta) = -(4\pi/c)j_x(\zeta), \quad (3)$$

$$\tilde{E}_x(\zeta + 0, \zeta) - \tilde{E}_x(\zeta - 0, \zeta) = (4\pi/c)(n_x/\varepsilon_2)j_z(\zeta), \quad (4)$$

$$\tilde{B}_x(\zeta + 0, \zeta) - \tilde{B}_x(\zeta - 0, \zeta) = (4\pi/c)j_y(\zeta), \quad (5)$$

$$\tilde{E}_y(\zeta + 0, \zeta) - \tilde{E}_y(\zeta - 0, \zeta) = 0, \quad (6)$$

где $n_x = K_x/k_0$. При этом граничные условия (3), (4) соответствуют p -поляризации волн, а условия (5), (6) — s -поляризации. Во всех точках $z \neq \zeta$, соответствующих границам раздела z_1 , z_2 и z_3 , выполняются стандартные условия непрерывности тангенциальных составляющих полей $\tilde{\mathbf{E}}(z, \zeta)$ и $\tilde{\mathbf{B}}(z, \zeta)$.

Описанная полная система граничных условий связывает между собой амплитуды волн, схематически изображенных на рис. 2 наклонными стрелками, и позволяет выразить напряженность электрического поля $\tilde{\mathbf{E}}(z_3 - 0, \zeta)$ на внешней границе z_3 структуры через плотность стороннего тока $\mathbf{j}(\zeta)$. При этом считается, что на границе z_2 можно пренебречь вкладом волн, отраженных от границы z_1 вследствие большой толщины L_1 подложки.

Полагая $z_3 = 0$ для p - и s -компонент \tilde{E}_σ ($\sigma = p, s$) поля $\tilde{\mathbf{E}}(-0, \zeta)$ (рис. 2) получаем

$$\tilde{E}_p(-0, \zeta) = G_{px}j_x + G_{pz}j_z, \quad \tilde{E}_s(-0, \zeta) = G_{sy}j_y, \quad (7)$$

где

$$G_{px} = \frac{(4\pi/c)\sqrt{\varepsilon_0}n_{2z}}{\varepsilon_0 n_{2z} + \varepsilon_2 n_{0z}} \frac{\Phi(\zeta - L) + r_{21}^p \Phi(L - \zeta)}{\Phi(-L) + r_{32}^p r_{21}^p \Phi(L)}, \quad (8)$$

$$G_{pz} = \frac{(4\pi/c)\sqrt{\varepsilon_0}n_x}{\varepsilon_0 n_{2z} + \varepsilon_2 n_{0z}} \frac{\Phi(\zeta - L) - r_{21}^p \Phi(L - \zeta)}{\Phi(-L) + r_{32}^p r_{21}^p \Phi(L)}, \quad (9)$$

$$G_{sy} = -\frac{(4\pi/c)}{n_{2z} + n_{0z}} \frac{\Phi(\zeta - L) + r_{21}^s \Phi(L - \zeta)}{\Phi(-L) + r_{32}^s r_{21}^s \Phi(L)}, \quad (10)$$

$r_{ij}^\sigma = \frac{\nu_i^\sigma - \nu_j^\sigma}{\nu_i^\sigma + \nu_j^\sigma}$ — коэффициент отражения света в σ -поляризации на границе двух полубесконечных сред i и j ($i, j = 0, 1, 2, 3$) при падении света из среды i в среду j , $\nu_j^p = \varepsilon_j/n_{jz}$, $\nu_j^s = -n_{jz}$, $n_x = \sqrt{\varepsilon_0} \sin(\varphi)$, $n_{jz} = \sqrt{\varepsilon_j - n_x^2}$, $\text{Im } n_{jz} \geq 0$, $\Phi(z) = \exp(ik_0 n_{2z} z)$, $L = L_2$.

Для вычисления интенсивности света $J^\sigma(\omega, \varphi)$, излучаемого на частоте ω под углом выхода φ в

σ -поляризации, необходимо конкретизировать статистическое поведение случайных сторонних токов $\mathbf{j}(\zeta)$, задавая определенную форму корреляционной функции $\langle j_\alpha(\zeta) j_\beta^*(\zeta') \rangle$ ($\alpha, \beta = x, y, z$). В предположении полной статистической независимости токов, возбуждаемых в разных точках ζ и ζ' , а также изотропного характера их возбуждения эту функцию можно записать в виде

$$\langle j_\alpha(\zeta) j_\beta^*(\zeta') \rangle = \mathcal{F}(\omega, \zeta) \delta_{\alpha\beta} \delta(\zeta - \zeta'), \quad (11)$$

где угловые скобки $\langle \dots \rangle$ означают статистическое, включая ориентационное, усреднение по ансамблю реализаций случайного тока.

Зависимость функции \mathcal{F} от частоты света ω определяет истинный (без учета интерференции Фабри–Перо) спектральный контур $S(\omega)$ излучения, а ее зависимость от ζ связана с пространственным распределением $J_0(\zeta)$ источников возбуждения люминесценции внутри образца. Полагая $\mathcal{F}(\omega, \zeta) \propto S(\omega) J_0(\zeta)$, для интенсивности регистрируемого излучения имеем

$$J^p = S(\omega) \int_0^L d\zeta J_0(\zeta) (|G_{px}(\omega, \zeta)|^2 + |G_{pz}(\omega, \zeta)|^2), \quad (12)$$

$$J^s = S(\omega) \int_0^L d\zeta J_0(\zeta) |G_{sy}(\omega, \zeta)|^2. \quad (13)$$

Формулы (8)–(10) и (12), (13) дают решение поставленной задачи и позволяют учесть при обработке экспериментальных данных по люминесценции влияние интерференции Фабри–Перо. Отметим, что предложенный нами способ решения сводится к нахождению электродинамических функций Грина, определяющих значения полей на внешней границе слоя 2. Применительно к случаю трехслойной планарной структуры полная система функций Грина построена в работе [19] и использована для решения задачи об отражении света с учетом сингулярных возмущений диэлектрической проницаемости на границах раздела.

3. Результаты и обсуждение

Для рассматриваемых нами экспериментальных условий (оптическое возбуждение со стороны подложки) будем задавать функцию $J_0(\zeta)$ пространственного распределения источников в виде

$$J_0(\zeta) \propto \exp(k_0(\zeta - L)), \quad (14)$$

где коэффициент k_0^{-1} имеет смысл эффективной глубины диффузии фотогенерируемых носителей заряда, захватываемых излучающими центрами. По порядку величины коэффициент k_0 должен быть равен или больше коэффициента экстинкции света на частоте фотовозбуждения.

Интегрирование в соотношениях (12), (13) с учетом (14) приводит к следующим выражениям для интенсивностей ФЛ в p - и s -компонентах:

$$J^p = \frac{S(\omega)(|n_{2z}|^2 + n_x^2)}{|\varepsilon_2 \cos \varphi + \sqrt{\varepsilon_0} n_{2z}|^2} \times \left(I_1 + |r_{21}^p|^2 I_2 + 2|r_{21}^p| \frac{|n_{2z}|^2 - n_x^2}{|n_{2z}|^2 + n_x^2} I_3^p \right) / \Delta_L^p, \quad (15)$$

$$J^s = \frac{S(\omega)}{|n_{2z} + \sqrt{\varepsilon_0} \cos \varphi|^2} (I_1 + |r_{21}^s|^2 I_2 + 2|r_{21}^s| I_3^s) / \Delta_L^s, \quad (16)$$

где

$$\Delta_L^\sigma = |\Phi(-L) + r_{02}^\sigma r_{21}^\sigma \Phi(L)|^2,$$

$$I_1 = \frac{1 - \exp(-(\kappa_0 - \kappa_2)L)}{\kappa_0 - \kappa_2}, \quad I_2 = \frac{1 - \exp(-(\kappa_0 + \kappa_2)L)}{\kappa_0 + \kappa_2},$$

$$I_3^\sigma = \frac{1}{\kappa_0^2 + q^2} \left\{ e^{-\kappa_0 L} [q \sin(\Delta_{21}^\sigma + qL) - \kappa_0 \cos(\Delta_{21}^\sigma + qL)] - q \sin \Delta_{21}^\sigma + \kappa_0 \cos \Delta_{21}^\sigma \right\},$$

$$\kappa_2 = 2k_0 \operatorname{Im} n_{2z}, \quad q = 2k_0 \operatorname{Re} n_{2z},$$

$$\Delta_{21}^\sigma = \arg(r_{21}^\sigma), \quad \sigma = p, s. \quad (17)$$

Интеграл I_1 определяет вклад волн $E^{(-)}$ (рис. 2), излучаемых источниками непосредственно в сторону внешней границы слоя 2, I_2 учитывает волны $E^{(+)}$, первоначально распространяющиеся в сторону внутренней границы слоя и меняющие направление своего распространения после однократного отражения от этой границы. Интеграл I_3^σ характеризует взаимную интерференцию волн $E^{(-)}$ и $E^{(+)}$. Интерференция, возникающая в результате многократного прохождения волн через слой 2 и их многократного отражения от внешней и внутренней границ этого слоя, определяется интерференционными знаменателями Δ_L^σ формул (15), (16).

Заметим, что интерференционный знаменатель Δ_L^σ явно входит в выражение для энергетического коэффициента пропускания всей структуры (рис. 2)

$$T^\sigma = |\Phi_1(L_1) t_{01}^\sigma t_{12}^\sigma t_{20}^\sigma|^2 / \Delta_L^\sigma, \quad (18)$$

где $\Phi_1(L_1) = \exp(ik_0 n_{1z} L_1)$, а $t_{ij}^\sigma = 1 + r_{ij}^\sigma$ — амплитудные коэффициенты пропускания на границе раздела двух полубесконечных сред i и j . Если интегралами I_3^σ в формулах (15), (16) можно пренебречь и частотная дисперсия в рассматриваемой области частот незначительна, то, как видно из сравнения (18) с (15), (16), интерференционная структура в спектре ФЛ полностью определяется интерференционной структурой коэффициента пропускания T^σ .

Следует также отметить, что поправки n_x^2 , входящие в формулу (15) для интенсивности излучения в p -компоненте, описывают вклад в излучение дипольных осцилляторов, колеблющихся вдоль оси Z структуры. Если считать, что $n_x^2 \ll |\varepsilon_2|$ и $\operatorname{Im} \varepsilon_2 = 0$, то формулы (15), (16) становятся эквивалентными выражениям, полученным в работе [17]. При нормальном относительно

поверхности пленки выходе излучения, как и следует ожидать, формулы (15) и (16) дают один и тот же результат.

В случае исследованных нами аморфно-нанокристаллических кремниевых пленок (толщиной $L \approx 0.7 \mu\text{m}$) коэффициент экстинкции возбуждающего света на длине волны $\lambda = 488 \text{ nm}$ имеет значение порядка 10^4 cm^{-1} , а коэффициент преломления материала составляет 2.2–2.8. Тогда значение интеграла I_3^σ , вносящего вклад в интерференцию, в выражениях (15), (16) мало по сравнению с I_1 и I_2 в измеряемом диапазоне длин волн, и спектр излучения возбужденного центра в основном промодулирован интерференционной структурой спектра пропускания пленки. Следовательно, деление спектра ФЛ на спектр пропускания позволяет исключить эффект интерференции в спектре излучения рекомбинационного центра. Это продемонстрировано на рис. 3, где приведены исходный спектр ФЛ при нормальном, $\varphi \approx 0^\circ$, выходе излучения (кривая 1), результат его деления на спектр пропускания (кривая 2, точки) и аппроксимация полученного делением спектра гауссовской кривой (сплошная кривая 2).

Как следует из (15), (16), наблюдаемая интерференционная картина в исходном спектре ФЛ обусловлена частотной зависимостью интерференционного знаменателя Δ_L^σ . Как видно из структуры выражения для Δ_L^σ , амплитуда осцилляций Δ_L^σ определяется значениями коэффициентов отражения $r_{02}^\sigma, r_{21}^\sigma$. В случае p -компоненты поляризации ($\sigma = p$) эти коэффициенты становятся малыми при углах выхода излучения, близких к углу

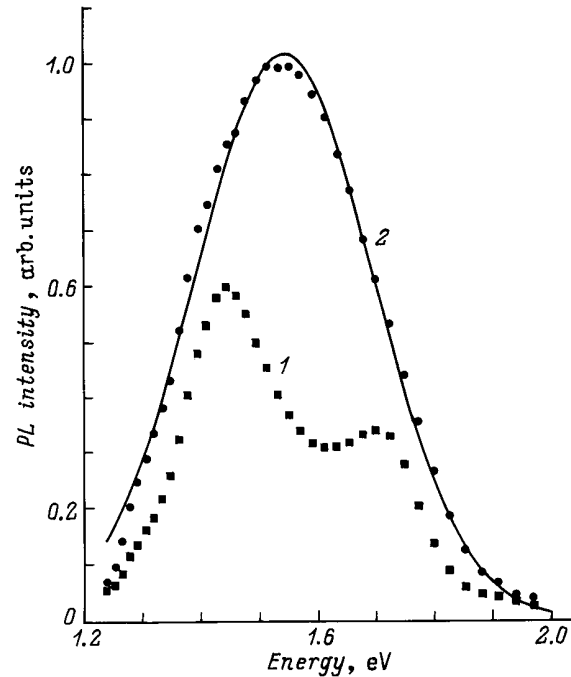


Рис. 3. Экспериментальный спектр ФЛ (1) и спектр (2, точки), восстановленный делением спектра 1 на спектр пропускания. $T = 77 \text{ K}$. Сплошная линия 2 — восстановленный спектр, аппроксимированный гауссовской кривой: $E_{\text{max}} = 1.52 \text{ eV}$, полуширина 0.3 eV .

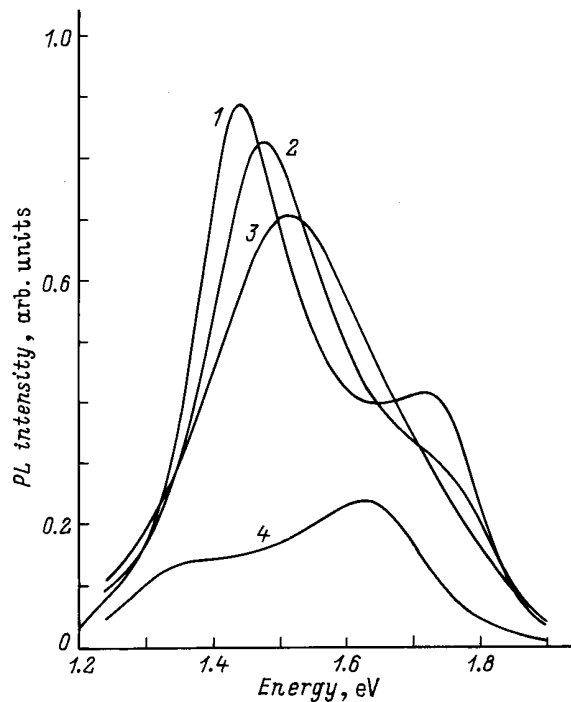


Рис. 4. Теоретические спектры ФЛ в p -компоненте поляризации при разных углах выхода излучения. $\varphi = 0$ (1), 45° (2), 66° (угол Брюстера) (3) и 82° (4).

Брюстера φ_B . Тогда (см. (17)) эффект интерференции оказывается несущественным.

На рис. 4 представлены результаты расчетов по формуле (15) спектров ФЛ в зависимости от угла φ выхода излучения для p -поляризации. При вычислениях функции $S(\omega)$ были использованы параметры гауссовской кривой, аппроксимирующей спектр ФЛ на рис. 3. Видно (кривая 3 на рис. 4), что интерференционная структура спектра действительно исчезает при $\varphi = \varphi_B \equiv \arctg(\sqrt{\varepsilon_2})$. Спектры ФЛ, измеренные при указанных (рис. 4) углах выхода излучения в p -поляризации, изображены на рис. 5. Наблюдается хорошая корреляция между теоретическими (рис. 4) и экспериментальными (рис. 5) кривыми. Таким образом, для исключения интерференционных эффектов в ФЛ тонких пленок достаточно проводить регистрацию спектров в p -поляризованном свете при углах выхода излучения, близких к φ_B , не обращая к исследованиям спектров пропускания.

Из проведенного анализа можно заключить, что истинный спектр ФЛ исследованных пленок связан с одним типом рекомбинационных центров, формирующих линию излучения с максимумом в районе 1.5 eV и полушириной $\sim 0.3 \text{ eV}$. При измерениях было установлено, что положение пика ФЛ практически не зависело от размеров и объемной доли нанокристаллитов, которые менялись в зависимости от технологических условий осаждения в пределах $30\text{--}50 \text{ \AA}$ и $0\text{--}40\%$ соответственно. Таким образом, наблюдаемое излучение, по-видимому, не связано с рекомбинацией электронно-дырочных пар внутри объема нанокристаллитов. Довольно слабое температурное

гашение ФЛ (при повышении температуры пленки от азотной до комнатной сигнал падал менее чем на два порядка) не позволяет связать наблюдаемую ФЛ с рекомбинацией носителей через хвосты плотности локализованных состояний, свойственной обычно аморфному кремнию. С другой стороны, ввиду большой пористости пленок (на это указывает относительно малое значение показателя преломления) нельзя исключить значительное влияние локализованных поверхностных состояний в порах на излучательную рекомбинацию носителей.

В [20–22] рассмотрен механизм рекомбинации с участием экситонов, локализованных на поверхностях пор и интерфейсах нанокристаллитов. Отметим, что в исследованных нами пленках наблюдалась быстрая (наносекундная) кинетика ФЛ. Исходя из этого факта, можно предположить, что экситоноподобный механизм излучательной рекомбинации реализуется также в аморфно-нанокристаллических кремниевых пленках, исследованных в настоящей работе.

С помощью описанной выше процедуры нахождения истинного спектра излучения была исследована также зависимость интегральной интенсивности ФЛ от объемной доли нанокристаллитов в пленках смешанного аморфно-нанокристаллического фазового состава (рис. 6). Наблюдаемый резкий спад интенсивности ФЛ по мере повышения объемной доли нанокристаллической фазы можно связать с возникновением протяженных нанокристаллических кластеров [23]. В областях пленки, где произошла кластеризация значительной доли нанокристаллитов, маловероятна локализация фотовозбужденных носителей. Вследствие этого существенно повышается вероятность их ухода в безызлучательные состояния, что приводит к

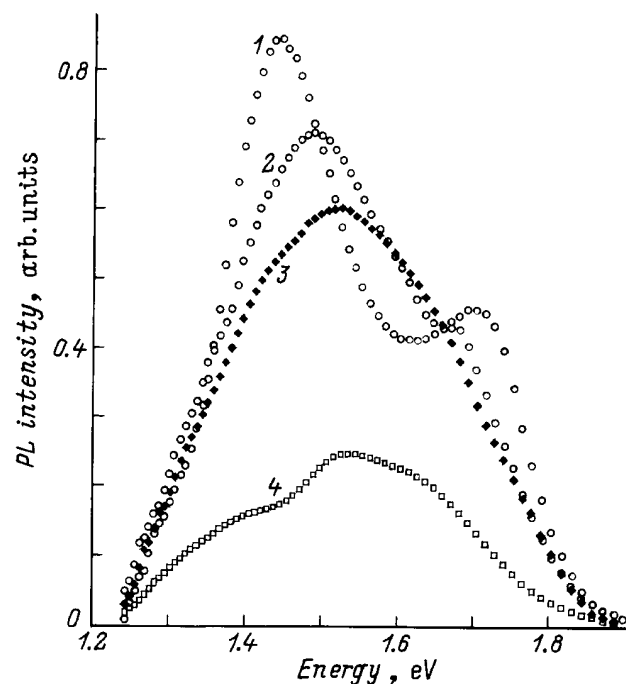


Рис. 5. Экспериментальные спектры ФЛ в p -компоненте поляризации при разных углах выхода излучения. $\varphi = 0$ (1), 45° (2), 66° (угол Брюстера) (3) и 82° (4). $T = 77 \text{ K}$.

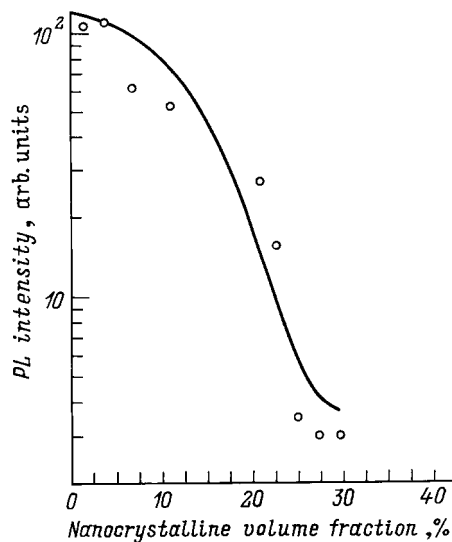


Рис. 6. Зависимость интенсивности ФЛ от объемной доли нанокристаллитов. $T = 77$ К.

затуханию ФЛ. Как видно из рис. 6, сигнал ФЛ исчезает, когда значение объемной доли нанокристаллической фазы находится в районе 25%.

Отметим, что получение тонких пленок, где бы вообще отсутствовала интерференция, требует специальных технологических мер, таких как, например, шлифовка кварцевой подложки, что может привести, в частности, к нарушению процесса нуклеации кристаллитов и повлечь за собой изменение свойств пленки. Поэтому регистрация спектров пропускания вместе со спектрами ФЛ в одной и той же точке поверхности пленки представляется весьма целесообразной, позволяющей восстановить истинный спектр излучения, в тех случаях, когда параметры пленки допускают возникновение интерференции.

В особо тонких пленках ($L < 0.4 \mu\text{m}$) в исследуемой области спектра может возникать только один интерференционный максимум. Его положение и ширина весьма чувствительны к небольшим изменениям толщины и показателя преломления пленки, которые могут меняться от серии к серии синтезированных образцов, а также при их последующей обработке. На этот факт необходимо обращать внимание при обсуждении возможных микроскопических механизмов формирования спектров ФЛ.

Таким образом, исследование фотолюминесценции тонких пленок гидрогенизированного аморфно-нанокристаллического кремния показало сильное влияние интерференции Фабри–Перо на форму спектров. Получены аналитические выражения, описывающие форму полосы излучения с учетом интерференционных поправок. Показано, что в системе пленка–прозрачная подложка, допускающей возбуждение ФЛ со стороны подложки, истинный спектр излучения может быть восстановлен простым делением спектра ФЛ на экспериментальный спектр пропускания исследуемого образца. Анализ спектров, выполненный с учетом интерференционных поправок, показал, что в области $0.6\text{--}1.0 \mu\text{m}$ формируется

только одна полоса излучения, обусловленная рекомбинацией носителей заряда на центрах одного и того же типа. Установлено, что ФЛ пленок практически исчезает, когда объемная доля нанокристаллической фазы превышает величину порядка 25%.

Авторы признательны В.А. Кособукину за участие в обсуждении теоретических результатов.

Работа выполнялась частично в рамках МНТП "Физика твердотельных наноструктур" (гранты № 95-1001, 96-1012) и проектов, поддержанных Российским фондом фундаментальных исследований (гранты № 96-02-16933, № 97-02-18138 и № 98-02-17350), а также проекта INCO-COPERNICUS PL87-8104.

Список литературы

- [1] L. Brus. Appl. Phys. **A53**, 6, 465 (1991).
- [2] C. Weisbuch. Optoelectronics-Devices and Technologies. **8**, 4, 523 (1993).
- [3] L.T. Canham. Appl. Phys. Lett. **57**, 10, 1046 (1990).
- [4] Y. Kanemitsu. Phys. Rev. **B48**, 4883 (1993).
- [5] T. Toyama, Y. Kotani, H. Okamoto, H. Kida. Appl. Phys. Lett. **72**, 12, 1489 (1998).
- [6] A.T. Voutsas, M.K. Hatalis, J. Boyce, A. Chiang. J. Appl. Phys. **78**, 12, 6999 (1995).
- [7] Ch. Yin, X. Liu, Y. He. J. Appl. Phys. **75**, 2, 797 (1994).
- [8] X. Liu, G. Chen, X.M. Bao. J. Appl. Phys. **78**, 12, 6193 (1995).
- [9] H. Song, X.M. Bao, N.S. Li, X. Wu. Appl. Phys. Lett. **72**, 3, 356 (1998).
- [10] K. Kim, K.B. Lee, H.J. Lee. Appl. Phys. Lett. **69**, 25, 3908 (1996).
- [11] J.F. Du, T. Wan, B. Zhou. In: Solid State Phenomena. V. 44–46. Hydrogenated Amorphous Silicon. Pt 1 / Ed. H. Neber-Aeschbacher. Scitec Publ. Ltd, Zurich (1995). P. 283.
- [12] L.Sh. Liao, X.M. Bao, X.Q. Zheng. Appl. Phys. Lett. **68**, 6, 850 (1996).
- [13] M. Nogami, Y. Abe. Appl. Phys. **65**, 20, 2545 (1994).
- [14] X. Zhao, O. Schoenfeld, J. Kusano. Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 5A, L649 (1994).
- [15] А.М. Данишевский, В. Латинис, М.М. Мездрогина, Е.И. Теруков. ЖЭТФ **104**, 6(12), 4031 (1993).
- [16] C. Delerue, G. Allan, M. Lannoo. Phys. Rev. **B48**, 15, 11 024 (1993).
- [17] Th. Weber, H. Stolz, W. von der Osten, M. Heuken, K. Heime. Semicond. Sci. Technol. **10**, 1113 (1995).
- [18] Р. Аззам, Н. Башара. Эллипсометрия и поляризованный свет. Мир, М. (1981). 584 с.
- [19] В.А. Кособукин, А.М. Самсонов. ЖТФ **54**, 1, 19 (1984); Препринт ФТИ им. А.Ф. Иоффе АН СССР № 806. ЛИЯФ, Л. (1983). 55 с.
- [20] D.J. Wolford, J.A. Reimer, V.A. Scott. Appl. Phys. Lett. **42**, 4, 369 (1983).
- [21] V.A. Scott, D.J. Wolford. Physica **B117–118**, 920 (1983).
- [22] S. Furakawa, N. Matsumoto. Solid State Commun. **48**, 6, 539 (1983).
- [23] В.Г. Голубев, В.Ю. Давыдов, А.В. Медведев, А.Б. Певцов, Н.А. Феоктистов. ФТТ **39**, 8, 1348 (1997).