

Эффективное сечение возбуждения эрбия в аморфном гидрогенизированном кремнии при оптической накачке

© М.С. Бреслер, О.Б. Гусев, П.Е. Пак, Е.И. Теруков, И.Н. Ясиевич

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

(Поступила в Редакцию 5 сентября 2000 г.)

Методом измерения времени нарастания фотолюминесценции ионов эрбия при импульсном возбуждении аморфного гидрогенизированного кремния, легированного эрбием, определены эффективное сечение возбуждения эрбия в матрице аморфного кремния и полное время жизни ионов эрбия в возбужденном состоянии. Анализ кинетических уравнений, описывающих процессы возбуждения и девозбуждения ионов эрбия в полупроводниковой матрице, позволяет выяснить микроскопический смысл эффективного сечения возбуждения. Показано, что измерение эффективного сечения возбуждения дает возможность оценить концентрацию оптически активных ионов эрбия в матрице аморфного кремния.

Работа выполнена при поддержке грантов Российского фонда фундаментальных исследований № 98-02-18246 и 99-02-18079, гранта Миннауки 97-1036, грантов ИНТАС 99-01872 и COPERNICUS 977048-SIER.

Полупроводниковые матрицы, легированные редкоземельными элементами, представляют большой интерес с точки зрения применения в оптоэлектронных устройствах. Особое внимание в последнее время привлечено к эрбию в кристаллическом и аморфном кремнии, поскольку длина волны $1.54 \mu\text{m}$, соответствующая оптическому переходу из первого возбужденного состояния $^4I_{13/2}$ в основное состояние $^4I_{15/2}$ внутренней $4f$ -оболочки иона эрбия Er^{3+} , совпадает с минимумом потерь в кварцевых волоконно-оптических линиях связи. В отличие от диэлектрических матриц, где возбуждение ионов эрбия происходит прямым поглощением фотонов, в полупроводниковых матрицах ионы эрбия возбуждаются в основном свободными носителями заряда через Оже-процесс [1] или горячими носителями, как это имеет место в случае электролюминесценции эрбия при обратном смещении на p - n -переходе [2]. Эффективность возбуждения эрбия в полупроводниковой матрице можно охарактеризовать сечением возбуждения иона эрбия в соответствующей матрице. Сечение возбуждения эрбия было измерено в кристаллическом кремнии для различных механизмов возбуждения, и показано, что оно на несколько порядков превышает сечение возбуждения эрбия прямым поглощением фотонов в диэлектрической матрице [3,4].

В настоящей работе впервые определено эффективное сечение возбуждения эрбия в матрице аморфного кремния при оптическом возбуждении. На основе детального рассмотрения механизма возбуждения выявлен физический смысл сечения возбуждения. Указано на общность понятия эффективного сечения возбуждения при оптическом возбуждении эрбия в других полупроводниковых матрицах. Определена концентрация оптически активного эрбия в аморфном гидрогенизированном кремнии и время жизни ионов эрбия в возбужденном состоянии.

1. Экспериментальные результаты

Образцы аморфного гидрогенизированного кремния, легированного эрбием, $a\text{-Si:H(Er)}$, исследовавшиеся в работе, были выращены магнетронным распылением металлического эрбия на подложку кристаллического кремния в атмосфере силана и аргона. Концентрация эрбия в пленке, по данным SIMS, составляла 10^{19}cm^{-3} , концентрация кислорода — 10^{20}cm^{-3} (остаточный кислород в магнетронной камере).

В качестве источника возбуждения эрбия использовался светодиод с максимумом излучения на длине волны $0.64 \mu\text{m}$, длительностью импульса 5ms и временем нарастания и спада фронтов $1 \mu\text{s}$. Излучение фотолюминесценции (ФЛ) анализировалось решеточным монохроматором с фокусным расстоянием 820mm и регистрировалось охлаждаемым германиевым фотоприемником по обычной схеме синхронного детектирования. Для измерения кинетики ФЛ эрбия использовались цифровой осциллограф и охлаждаемый германиевый фотоприемник.

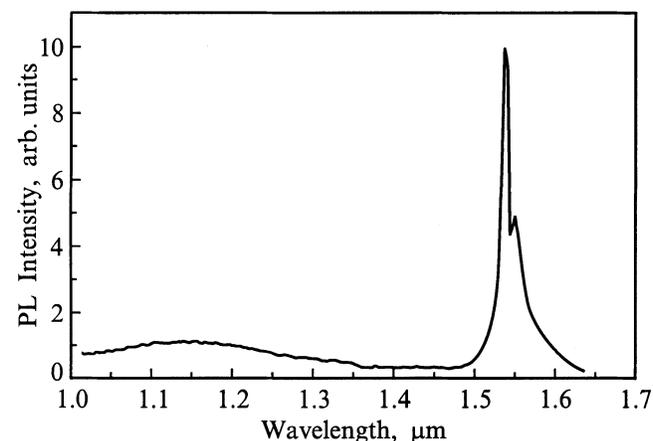


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции Si:H(Er) при $T = 90 \text{K}$.

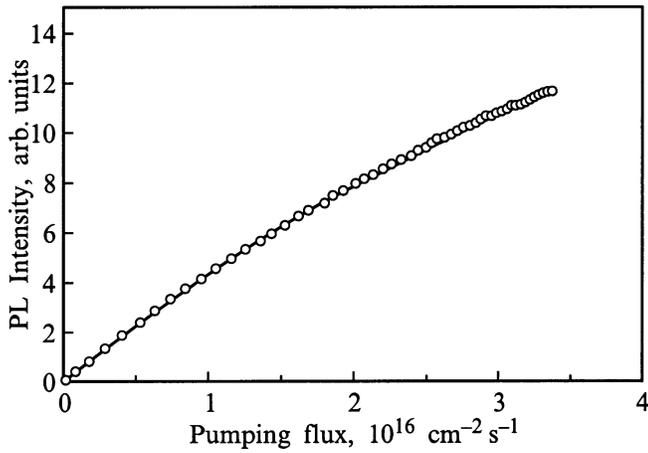


Рис. 2. Экспериментальная (точки) и расчетная (сплошная линия) зависимости интенсивности ФЛ эрбия от уровня накачки для эрбия в матрице аморфного гидрогенизированного кремния. $T = 90$ К.

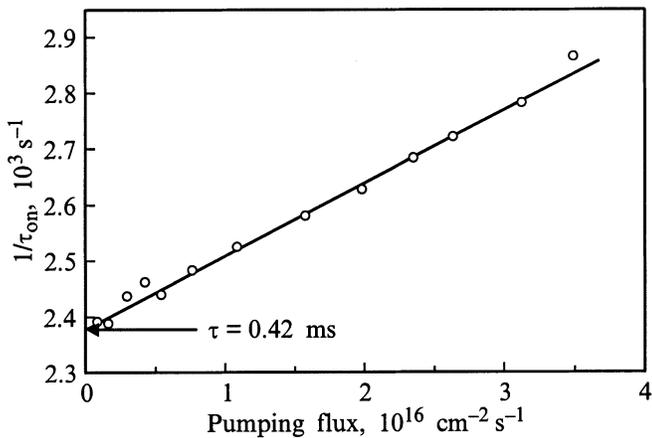


Рис. 3. Обратное характеристическое время возрастания ФЛ эрбия в зависимости от уровня возбуждения для эрбия в аморфном гидрогенизированном кремнии. $T = 90$ К.

Временное разрешение схемы регистрации ограничивалось инерционностью фотоприемника и составляло $5 \mu\text{s}$.

На рис. 1 приведен спектр ФЛ образца Si:H(Er) в области $1\text{--}1.8 \mu\text{m}$. Наблюдаемая линия с максимумом $1.54 \mu\text{m}$ соответствует переходу из первого возбужденного состояния ${}^4I_{13/2}$ в основное состояние ${}^4I_{15/2}$ во внутренней $4f$ -оболочке иона эрбия. На рис. 2 приведена зависимость интенсивности эрбиевой люминесценции на длине волны $1.54 \mu\text{m}$ от мощности накачки, измеренная при температуре 90 К.

Из обработки осциллограмм сигнала ФЛ эрбия на длине волны $1.54 \mu\text{m}$ можно получить зависимость времени нарастания сигнала эрбиевой ФЛ τ_{on} от мощности накачки. На рис. 3 приведено обратное время нарастания $1/\tau_{\text{on}}$ интенсивности ФЛ эрбия (точки) на длине волны $1.54 \mu\text{m}$ в зависимости от мощности накачки.

2. Обсуждение результатов

Экспериментальные данные, представленные на рис. 3, как и в случае кристаллического кремния, легированного эрбием [2], хорошо описываются решением кинетического уравнения, учитывающего процессы возбуждения и девозбуждения ионов эрбия,

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

где σ — сечение возбуждения эрбия, Φ — поток накачивающих фотонов, τ — полное время жизни иона эрбия в возбужденном состоянии, N_{Er} и N^* — полная концентрация и концентрация возбужденных ионов эрбия соответственно.

Решение уравнения (1), описывающего нарастание интенсивности ФЛ эрбия после включения прямоугольного импульса возбуждения, имеет вид

$$I_{\text{Er}} = \frac{\sigma \tau \Phi N_{\text{Er}}}{\sigma \tau \Phi + 1 \tau_{\text{rad}}} \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\sigma \Phi + \frac{1}{\tau} \right) t \right] \right\}, \quad (2)$$

где τ_{rad} — излучательное время жизни иона эрбия в возбужденном состоянии. Из выражения (2) следует, что при включении импульса тока накачивающего светодиода интенсивность эрбиевой люминесценции приближается к стационарному состоянию с характерным временем τ_{on} , определяемым как

$$\frac{1}{\tau_{\text{on}}} = \sigma \Phi + \frac{1}{\tau}. \quad (3)$$

На рис. 3 показана расчетная зависимость $1/\tau_{\text{on}}$, подогнанная к экспериментальным результатам с параметрами $\sigma = 1.4 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$, $\tau = 420 \mu\text{s}$.

Полученные значения σ и τ можно проверить описанием зависимости интенсивности ФЛ эрбия от уровня накачки в стационарных условиях. Действительно, стационарное решение уравнения (1) имеет вид

$$I_{\text{Er}} = \frac{\sigma \tau \Phi N_{\text{Er}}}{\sigma \tau \Phi + 1 \tau_{\text{rad}}}. \quad (4)$$

Зависимость интенсивности ФЛ эрбия от уровня накачки определяется теми же параметрами σ и τ , что входят в (3). Рассчитанная зависимость с этими параметрами хорошо описывает экспериментальную (рис. 2).

В (1) сечение возбуждения σ было введено как феноменологический параметр. Для понимания физического смысла сечения возбуждения σ необходимо детальное рассмотрение процессов возбуждения и девозбуждения ионов эрбия в аморфной матрице.

Известно, что введение эрбия в матрицу аморфного кремния приводит к образованию оборванных связей кремния (дефектов), которые могут иметь один электрон (дефект в состоянии D^0) или два электрона (дефект в состоянии D^-). Эти состояния образуют уровни примерно в середине запрещенной зоны матрицы и разделены корреляционной энергией $\sim 0.1\text{--}0.2$ эВ. Энергетическое положение $4f$ -терма иона эрбия примерно на

10 eV ниже края валентной зоны. Поэтому возбуждение $4f$ -оболочки иона эрбия может происходить только через кулоновское взаимодействие с носителями заряда матрицы (Оже-процесс).

Хорошо известно [5,6], что легирование кристаллического кремния эрбием и кислородом приводит к появлению донорных уровней, образуемых эрбий-кислородными комплексами, с энергией связи в интервале 0.1–0.25 eV. Поэтому можно ожидать, что аналогичное легирование аморфного кремния также сопровождается образованием донорных состояний. Это подтверждается n -типом проводимости аморфного кремния, легированного эрбием и кислородом. Измерения температурного хода электропроводности, проведенные для ряда образцов, дают значения энергии Ферми на 0.5 eV ниже края подвижности в зоне проводимости. Поскольку концентрация эрбия в аморфном кремнии может достигать 10^{20} cm^{-3} , а концентрация D -дефектов не превосходит $10^{18} - 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ [7,8], все D -дефекты в аморфном кремнии, легированном эрбием, в равновесии оказываются в состоянии D^- .

При межзонном возбуждении близнецовая излучательная рекомбинация электронно-дырочных пар эффективна только при достаточно низких температурах, поэтому естественно предположить, что в наших образцах, содержащих большое количество D -дефектов [8], рекомбинация происходит в основном безызлучательно через D -дефекты. Это подтверждается отсутствием в наших образцах при температуре эксперимента $T = 90 \text{ K}$ излучательных переходов зона–зона (рис. 1). Поскольку в условиях равновесия концентрации электронов, дырок и концентрация D^0 -центров пренебрежимо малы, а концентрация D^- -центров практически равна полной концентрации D -центров, $N_D^- \approx N_D$, то на первой стадии рекомбинации дырки захватываются D^- -центрами, превращая их в D^0 -дефекты. Этот процесс описывается кинетическим уравнением

$$\frac{dp}{dt} = \alpha \Phi - c_p p N_D^-, \quad (5)$$

где Φ — поток фотонов, α — коэффициент поглощения накачивающего излучения, p — концентрация свободных дырок, c_p — коэффициент захвата дырок D^- -центрами.

На втором этапе рекомбинации происходит переход электронов из хвостов зоны проводимости на D^0 -центры с превращением последних в D^- -центры. Концентрация свободных электронов описывается уравнением

$$\frac{dn}{dt} = \alpha \Phi - c_n n N_D^0. \quad (6)$$

Здесь n — концентрация свободных электронов, c_n — полный коэффициент захвата электронов D^0 -центрами, который представляет собой сумму вкладов от двух конкурирующих процессов: захвата электрона с возбуждением эрбия через Оже-процесс и многофононного безызлучательного захвата, $c_n = c_A + c_{mp}$ [8,9].

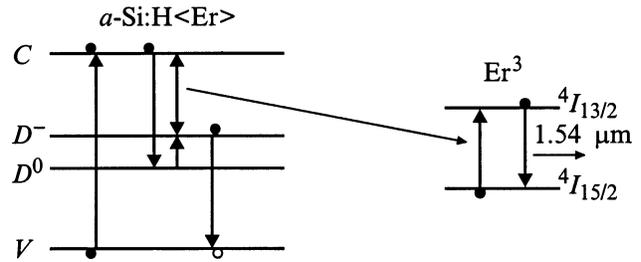


Рис. 4. Схема возбуждения эрбия в аморфном гидрогенизированном кремнии при межзонной оптической накачке.

Отметим, что в нашем случае D^0 -центры образуются только при возбуждении в результате захвата дырок D^- -центрами. Их концентрация может быть найдена из уравнения

$$\frac{dN_D^0}{dt} = c_p p N_D^- - c_n n N_D^0. \quad (7)$$

Полученная система кинетических уравнения должна быть дополнена условием нейтральности

$$n = p + N_D^0. \quad (8)$$

Процессы накачки, возбуждения и излучения ионов эрбия схематически представлены на рис. 4. За возбуждение ионов эрбия в матрице аморфного кремния ответствен Оже-процесс, вероятность которого пропорциональна произведению концентрации свободных электронов на концентрацию D^0 -центров. Концентрация возбужденных ионов эрбия определяется кинетическим уравнением

$$\frac{dN^*}{dt} = c_A n N_D^0 \left(1 - \frac{N^*}{N_{Er}} \right) - \frac{N^*}{\tau}. \quad (9)$$

При анализе системы кинетических уравнений (5)–(9) можно воспользоваться тем обстоятельством, что система из матрицы и ионов эрбия разделена на две подсистемы: ”быструю” (матрица), в которой времена релаксации всех электронных процессов (рекомбинация, захват свободных носителей D -центрами) не превышают нескольких десятков микросекунд, и ”медленную” (ионы эрбия), в которой характерное время (время жизни ионов эрбия в возбужденном состоянии) по порядку величины равно одной миллисекунде. Поэтому, рассматривая эволюцию системы ионов под действием включенного механизма накачки, можно считать, что подсистема свободных носителей и дефектов уже находится в стационарном состоянии. В этом случае уравнение (6) дает: $n N_D^0 = \alpha \Phi / c_n$.

Сопоставление (9) и (1) показывает, что процессы возбуждения ионов эрбия в матрице аморфного кремния действительно могут быть описаны с помощью феноменологического параметра σ — сечения возбуждения ионов эрбия, которое имеет смысл

$$\sigma = \frac{\alpha}{N_{Er}} \frac{c_A}{c_A + c_{mp}}. \quad (10)$$

Отметим, что в уравнениях (1), (9), (10) под N_{Er} следует понимать не полную концентрацию ионов эрбия, а только концентрацию оптически активных ионов, которая, например, в кристаллическом кремнии обычно составляет только несколько процентов от полной концентрации.

Таким образом, как следует из (10), в случае оптической накачки через свободные носители заряда в аморфной матрице сечение возбуждения σ обратно пропорционально концентрации оптически активного эрбия. Это обусловлено тем, что в этом случае коэффициент поглощения накачивающего излучения не зависит от концентрации эрбия (как это имеет место при прямом оптическом возбуждении эрбия в диэлектрических матрицах), а определяется только комбинированной плотностью состояний для межзонного перехода. Естественно, что в таких условиях вероятность возбуждения одного иона тем выше, чем на меньшее количество ионов приходится заданный поток возбуждающих частиц.

Вероятность Оже-возбуждения ионов эрбия при захвате электрона на D^0 -центр (DRAE-процесс), а также вероятность конкурирующего с ним многофононного безызлучательного захвата были вычислены в работе [9], где было показано, что в широкой области температур от температуры жидкого гелия до 200 К вероятность процесса DRAE преобладает, следовательно, отношение c_A/c_n близко к единице. С ростом температуры интенсивность многофононных переходов значительно возрастает, и отношение c_A/c_n заметно падает.

Поскольку при температуре 90 К, согласно данным работы [9], отношение $c_A/(c_A + c_{mp}) \approx 1$, можно воспользоваться формулой (10) и определить концентрацию оптически активных ионов эрбия в аморфной матрице. Если взять характерный коэффициент поглощения аморфного кремния на длине волны $0.64 \mu\text{m}$ равным 10^4 cm^{-1} и экспериментально определенное сечение возбуждения $\sigma = 1.4 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$, то концентрация оптически активных ионов эрбия получается равной $7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, т.е. составляет несколько процентов от полной концентрации ионов эрбия, которая в наших образцах достигала 10^{19} cm^{-3} .

Таким образом, в работе впервые измерено эффективное сечение возбуждения эрбия в матрице аморфного кремния. Показан физический смысл этого понятия в приложении к возбуждению эрбия в этой матрице при оптической накачке. Хорошее согласие экспериментальных и расчетных зависимостей для интенсивности ФЛ эрбия и времени нарастания интенсивности от мощности накачки подтверждает правильность полученных значений для эффективного сечения возбуждения эрбия и полного времени жизни иона эрбия в возбужденном состоянии. Показано, что измерение эффективного сечения возбуждения позволяет оценить концентрацию оптически активных ионов эрбия в аморфном кремнии.

Авторы признательны Б.П. Захарчене за поддержку работы и полезные дискуссии.

Список литературы

- [1] I.N. Yassievich, L.C. Kimerling. *Semicond. Sci. Technol.* **8**, 718 (1993).
- [2] S. Coffa, G. Franzo, F. Priolo. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2077 (1996).
- [3] J. Palm, F. Gan, B. Zheng, J. Michel, L.C. Kimerling. *Phys. Rev.* **B54**, 17 603 (1996).
- [4] F. Priolo, G. Franzo, S. Coffa, A. Carnera. *Phys. Rev.* **B58**, 4443 (1998).
- [5] J.L. Benton, J. Michel, L.C. Kimerling, D.C. Jacobson, Y.H. Xie, D.J. Eaglesham, E.A. Fitzgerald, J.M. Poate. *J. Appl. Phys.* **70**, 2667 (1991).
- [6] S. Libertino, S. Coffa, G. Franzo, F. Priolo. *J. Appl. Phys.* **78**, 3867 (1995).
- [7] K. Pierz, W. Fuhs, H. Mell. *Phys. Mag.* **B63**, 123 (1991).
- [8] W. Fuhs, I. Ulber, G. Weiser, M.S. Bresler, O.B. Gusev, A.N. Kuznetsov, V.Kh. Kudoyarova, E.I. Terukov, I.N. Yassievich. *Phys. Rev.* **B56**, 9545 (1997).
- [9] I.N. Yassievich, M.S. Bresler, O.B. Gusev. *J. Phys.: Condens. Matter.* **9**, 9415 (1977).