

稀土元素 Dy 对金属/绝缘体/金属隧道结 发光特性的影响*

王茂祥* *

(东南大学物理系, 南京 210096)

孙承休 俞建华 高中林

(东南大学电子工程系, 南京 210096)

摘 要 在普通金属/绝缘体/金属(MIM)隧道发光结的基础上, 制备了掺稀土元素 Dy 的 MIM 结构隧道发光结。简单介绍了该结的制备工艺, 对结的发光特性及发光过程中表面等离极化激元(SPP)的色散关系进行了讨论, 对发光光谱进行了分析, 阐述了稀土元素 Dy 对结的发光特性的影响。

关键词 MIM 结, 稀土元素 Dy, 发光特性, 光谱。

1 引 言

金属/绝缘体/金属隧道结的发光现象是由 Lambe 和 McCarthy^[1] 首先发现的。这种隧道二极管发光结的基本结构是以载玻片为基底通过真空镀膜制备的 Al-Al₂O₃-Au 薄膜系统。其中底电极 Al 条厚约 100 nm, 自然氧化生成的 Al₂O₃ 约 3 nm 厚, 而垂直于底电极的条形顶电极 Au 厚约 40 nm, 当两电极间加以一定的直流电压(3 V ~ 5 V), 结面就会发射出各种色彩的可见光。这对开发新型平面薄膜型光电器件意义重大, 为此, 许多学者从理论和实验两方向进行了深入研究, 着重探讨如何提高发光强度及发光稳定性, 以使这种发光二极管进一步走向实用化。如 Hansma^[2] 等人曾在 Au 顶电极与 Al₂O₃ 之间制备一层 Au 颗粒, Kirtely^[3] 等人在 Al 电极底部制备一层光栅, 形成表面均匀的粗糙度以调制光发射。Ushioda^[4] 等人则采用棱镜耦合发光, 本课题组曾采用声表面波器件调制光发射^[5, 6]。考虑到稀土元素为表面活性元素, 具有独特的电子结构特点, 稀土离子具有丰富的能级和 4f 电子的跃迁特性, 有利于隧穿电子的激发发光, 作者在 MIM 隧道二极管的制备中掺入少量稀土元素 Dy, 形成 Al-Al₂O₃-Dy-Au 薄膜结构隧道发光结, 结果发现其发光强度得到明显的提高, 发光稳定性也有明显改善。本文简单介绍掺稀土元素 Dy 的 MIM 结的制备工艺, 观察了发光特性, 测试了发

* 国家自然科学基金、集成光电子学国家重点联合实验室资助课题。

* * 现为东南大学电子工程系博士生。

收稿日期: 1997-10-03; 收到修改稿日期: 1997-12-15

光功率,并对发光光谱进行了分析。

2 实 验

采用表面较平整的载玻片作基底,制备了掺稀土元素 Dy 的 MIM 隧道结,制备工艺如下:

首先对载玻片进行去离子水、丙酮的超声清洗,再用玻璃洗液(乙醚·乙醇=3·1)擦洗,然后放在烘箱中高温烘干,洗净烘干的载玻片上可采用掩模进行真空蒸发镀膜,所蒸的膜层及结构:1) 蒸底层 MgF_2 , 该层 MgF_2 用以提供表面粗糙度,可以适当厚一些,一般在(100~200) nm; 2) 蒸镀底电极 Al 膜,为了较好复现表面粗糙度,该层厚度适中,一般在 100 nm 左右即可; 3) 制备氧化膜:使 Al 膜充分暴露大气中,在空气中自然氧化 48 小时,生成的 Al_2O_3 厚约(3~5) nm; 4) 蒸稀土元素 Dy, 该层膜要薄一些,厚约 10 nm 即可; 5) 蒸边角 MgF_2 , 在结的边缘蒸上一层边角 MgF_2 , 一般几十纳米左右,主要是防止结在边缘高场强下的击穿; 6) 蒸镀顶电极 Au 膜,厚约(30~50) nm。最后采用银导电胶引出电极形成图 1 所示的结构。为便于比较,也采用同样工艺制备了不含 Dy 的普通 MIM 结,对所制备的隧道发光结,采用光功率计(22XLA, California, USA)对结的发光功率进行了测试。采用光谱仪(Model 1109)测量了其发光光谱(如图 4 所示)。

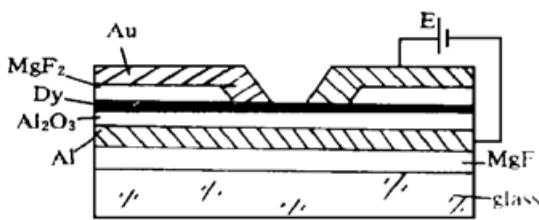


Fig. 1 Schematic structure of tunnel junction

3 结果与讨论

3.1 发光特性

对所制备的掺 Dy 与不掺 Dy 的 MIM 结分别加上直流电压,观察其发光特性,其中 Au 接正极,Al 接负极,起始发光电压均小于 10 V,普通 MIM 结发光颜色开始呈菊黄色,而掺稀土 Dy 的 MIM 结发光颜色则偏红。在实验中反复观察均发现这一现象,且 MIDyM 结发光亮度较普通 MIM 结为高。另外,掺稀土 Dy 的 MIM 结整个结面发光较均匀,基本上无闪烁感,而普通 MIM 结发光时局部闪烁,均匀性不好。当这两结构的发光结放置一个月后再次观察,发现 MIDyM 结发光特性基本不变,而普通 MIM 结发光强度明显衰减。这些表明掺稀土 Dy 后有利于 MIM 隧道结发光稳定性的提高。

MIM 结(Al- Al_2O_3 -Au)的发光机理是:电子由 Al 底电极隧穿 Al_2O_3 层到达 Au 顶电极,激发起各界面的表面等离极化激元(surface plasmon polariton, SPP),等离极化激元是束缚于界面的电磁波,在表面粗糙度散射下,形成自由光子发射出来。其色散方程可由麦克斯韦方程及边界条件联合求解得到,由(1)式表示^[7]:

$$K_{//}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon_0 \epsilon(\omega)}{\epsilon_0 + \epsilon(\omega)}, \quad (-\infty < \epsilon(\omega) < -\epsilon_0) \quad (1)$$

式中 c 为光速, $K_{//}$ 为等离极化激元波矢值, ω 为等离极化激元频率, ϵ_0 为绝缘介质的介电常数, $\epsilon(\omega)$ 为导电媒质(金属)的介电函数。其中, $\epsilon(\omega) = 1 - \omega_p^2/\omega^2$, ω_p 为等离子体振荡频率,代入(1)式得:

$$K_{//}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon_0(\omega^2 - \omega_p^2)}{(1 + \epsilon_0)\omega^2 - \omega_p^2}, \quad (0 < \omega < \frac{\omega_p}{\sqrt{\epsilon_0 + \epsilon(\omega)}})$$

式中各符号与前一致。色散关系如图 2 所示^[4]。

对 Al-Al₂O₃-Au 结, 氧化层中结模能量分布较其它模式大得多, 其坡印廷矢量值在 1.1 eV~ 2.2 eV 范围内, 结中掺入稀土元素 Dy 后, 由于其原子(离子)具有丰富的能级及 4f 电子的跃迁特性, 使其在结中易于扩散形成分散的 Dy 原子(离子)发光中心, 在吸收电磁振荡量子产生跃迁辐射时, 辐射光谱的能量大部分应落在 1.1 eV~ 2.2 eV(对应于波长 1130 nm~ 560 nm) 范围内, 所以光谱落在绿光以外的成分相应增加, 引起发光颜色偏红。另外, 从图 2 还可以看出, 不论哪一种发光模式, 对于同一频率下等离极化激元的波矢大于相应光波矢, 等离极化激元耦合光子时, 不能同时满足能量与动量守恒, 必需在粗糙度等作用下, 进行动量补偿, 才可以形成光发射。由于稀土元素外层的电子结构特点使其易于在结中扩散并附着于微粒表面, 形成线度不同的微团粒, 可以更好地改善结的粗糙度, 从而改善结的发光性能, 提高结的发光稳定性。粗糙度的提高, 也导致了与等离极化激元的耦合辐射增强, 并增强结区内隧道电流的波动, 从而使等离极化激元波激发的增强, 使 MIM 结发光强度增加, 观察的发光亮度提高。

为了更好地了解其发光性能, 从所制备的结中任选两组对发光时电压、电流、发光功率、发光面积进行了测量, 测量光功率时, 需将发光结面紧靠光功率计探头, 测试线路如图 3 所示。

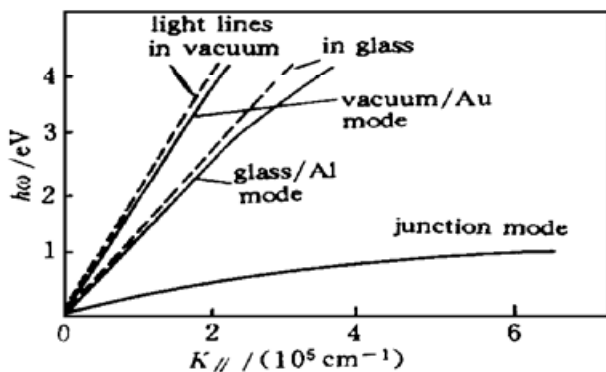


Fig. 2 The SPP dispersion curve

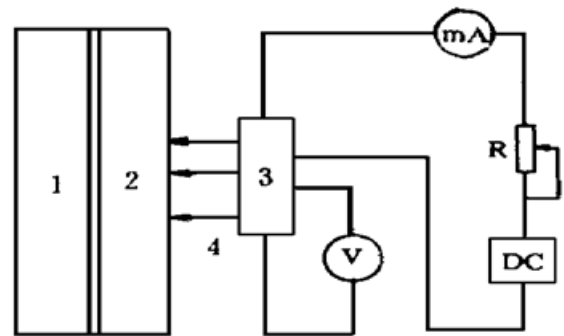


Fig. 3 The measure circuit of light power. 1-light power meter, 2-detector, 3-junction, 4-light emission

从修正后的转换发光效率可以看出, 掺 Dy 元素的发光结其发光效率达 10^{-6} , 比不掺 Dy 的 MIM 结(10^{-7}) 高一个量级, 测量结果如表 1 所示。

Table 1. The light emission characteristics of MIDyM and MIM junctions

sample junctions	V /V	I /mA	input power/mW	light power/nW	efficiency	area/mm ²
MIDyM	7.2	25	180.0	342.6	1.9×10^{-6}	3×3
	8.4	22	184.8	462.6	2.5×10^{-6}	
MIM	3.8	75	285.0	199.5	7.0×10^{-7}	3×3
	5.2	150	780.0	585.0	7.5×10^{-7}	

3.2 发光光谱

发光光谱如图 4 所示, (a) 为掺 DyMIM 结的谱图, 其谱峰值有两个, 分别位于 720 nm、631 nm 左右, (b) 为普通 MIM 结的光谱, 其谱峰值也为两个, 分别位于 718 nm 及 630 nm 左右。从谱图上还可以看出, 掺 DyMIM 结比不掺 DyMIM 结在同一电压下光强明显要强, 但是

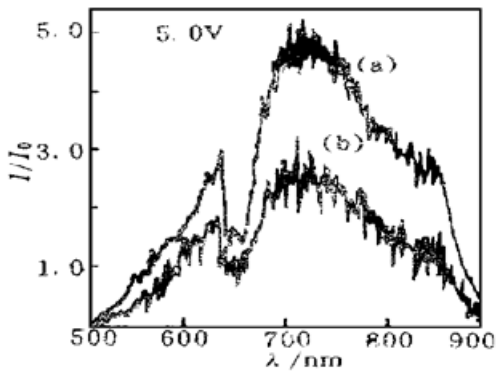


Fig. 4 The spectra of tunnel junction. (a) MIDyM junction, (b) MIM junction

其谱峰值却基本是一样的, 光谱波长范围均在(500~900) nm 之间, 这说明 Dy 元素的加入, 并不改变等离极化激元的发光模式。由色散关系可以看出, 发光模式主要对应于 Au-air 及 Au-Al₂O₃ 模式, 计算表明^[8], 这两种模式的渐近频率分别为 2.0 eV (630 nm) 及 1.7 eV (700 nm), 其值正好对应于两谱峰值, 说明发光过程中 Au-air 及 Au-Al₂O₃ 模式起主要作用, Dy 元素的加入只是强化了等离极化激元的激发发光, 并不能改变结的发光模式。由于 Dy 元素外层电子的独特结构, 决定了它是一种表面活性物质, 很容易在自然氧化生成的结构疏松的 Al₂O₃ 层内及与顶电极接触的浅层 Au 膜内扩散, 且易于附着于各膜层粒子的周围, 这种扩散附着的结果,

提高了结的粗糙度, 使得隧穿电子激发的等离极化激元容易被散射, 并且这种无规则的附着接触, 使空间电流分布的不均匀性增强从而导致空间电流波动的加剧, 有利于隧穿电子更有效地激发界面等离极化激元波, 这些都导致了结的发光强度增强。但是蒸镀的 Dy 含量较少, 因此 Al₂O₃ 层中 Dy 的含量也较少, 这样 Al₂O₃ 层的介电常数基本不变, Au 内等离子的振动频率基本不变, 因此色散关系也就基本不变, 所以光谱形状基本一致。

结 论 通过对掺 Dy 元素的 MIM 结与不掺 Dy 元素的 MIM 结的发光特性的对比分析, 可以看出, 微量稀土元素的加入, 对 MIM 结发光性能的改善效果比较明显, 由于稀土元素外层电子的独特结构, 它可以增强发光强度, 提高发光效率, 同时对发光稳定性的提高也起到一定作用, 而少量 Dy 元素的加入, 并不会改变 MIM 结的发光机制, 其发光光谱的谱峰值基本维持不变, 波长范围也与普通 MIM 发光结一致。合理地选择稀土元素, 控制其膜层的厚度从而使 MIM 结的发光特性得到更好的改善, 这为研究 MIM 隧道发光结提供了一条新的途径。

参 考 文 献

- [1] J. Lambe, S. L. McCarthy, Light emission from inelastic electron tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 1976, **37**(14) : 923~ 925
- [2] P. K. Hansma, H. P. Broida, Light emission from gold particles excited by electron tunneling. *Appl. Phys. Lett.*, 1978, **32**(9) : 545~ 547
- [3] J. Kirtley, T. N. Thesis, J. C. Tsang, Light emission from tunnel junctions on gratings. *Phys. Rev. (B)*, 1981, **24**(10) : 5650~ 5663
- [4] S. U. Shoida, J. E. Rutledge, R. M. Pierce, Theory of prism-coupled light emission from tunnel junctions. *Phys. Rev. (B)*, 1986, **34**(10) : 6804~ 6812
- [5] Sun Chengxiu, Zhang Youwen, Gao Zhongling, Some Improvement on the light emission properties of MIM tunneling junction system. *Chinese Journal of Electronics*, 1996, **5**(1) : 44~ 48
- [6] Cai Yimin, Sun Chengxiu, Gao Zhonglin, Metal-insulator-metal tunneling light-emission junction in surface acoustic wave field. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1994, **33**(11B) : L1610~ L1612
- [7] V. M. Agronovich, D. L. Mills, *Surface Polariton*, Amsterdam: Holland North-Holland Publishing Company, 1982, 7~ 11
- [8] 张佑文, 孙承休, 高中林等, 金属/绝缘层/金属隧道结的粗糙度与发光光谱的关系. *电子学报*, 1997, **25**(5) : 25~ 28

The Effect of Rare Earth Element Dy on the Light Emission Characteristics of MIM Junction

Wang Maoxiang

(Department of Physics Southeast University, Nanjing 210096)

Sun Chengxiu Yu Jianhua Gao Zhonglin

(Department of Electronic Engineering Southeast University, Nanjing 210096)

(Received 3 October 1997; revised 15 December 1997)

Abstract On the basis of common Metal/Insulator/Metal (MIM) junction, a new structure of Al-Al₂O₃-Dy-Au junction containing the rare element Dy was prepared. The preparation process was described simply. The light emission characteristics of MIM and MIDyM junction and the property of surface plasmon polariton (SPP) dispersion are discussed. The light spectra and the effect of rare earth element Dy on the light emission tunnel junction are analysed.

Key words MIM junction, rare earth element Dy, light emission characteristics, light spectra.

自起振被动锁模掺 Er³⁺ 光纤激光器获 269 fs 的超短光脉冲输出

最近,中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室陈国夫小组承担的中国科学院重点项目《全光纤飞秒激光脉冲的产生、放大技术与理论研究》取得重要成果。该小组采用环形腔掺 Er³⁺ 光纤激光器利用自起振被动锁模技术产生了工作十分稳定的锁模飞秒光脉冲。该激光器输出的最短光脉冲宽度达 269 fs, 中心波长 1.531 μm, 光谱带宽 10.1 nm, 光脉冲重复频率 21.37 MHz。激光器为两路输出, 最大输出功率分别为 0.25 mW 和 0.1 mW。实验中该激光器具有非常低的泵浦阈值, 维持锁模的最低泵浦功率仅 15 mW。同时利用本小组研制的掺 Er³⁺ 光纤飞秒光脉冲放大器对掺 Er³⁺ 光纤激光器输出的飞秒光脉冲进行放大, 得到的输出平均功率为 14.5 mW, 脉冲宽度为 260 fs, 增益近 20 dB。

全固化结构、稳定、可靠、小型高效的飞秒光纤激光器与光纤放大器系统是一种可仪器化、实用化、操作简单、造价低廉的新型飞秒光源, 在超快光学技术与超快光电子学技术(如高时间分辨测量、高空间分辨测量、全息成像、光学 CT、超快光电取样测量等)、超快过程研究、光纤通讯等领域具有广泛的应用前景。

刘东峰 白晋涛 报道

1998年11月2日收稿