УДК 621.315.592

Фотолюминесценция гетероструктур Ge/Si с квантовыми точками, созданными в процессе эпитаксии из ионно-молекулярных пучков

© Ж.В. Смагина[1], В.А. Зиновьев[1], А.В. Мудрый[2], О.М. Бородавченко[2], А.О. Баженов[1,3], А.В. Двуреченский[1], В.Д. Живулько[2]

[1] Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия
[2] ГНПО „Научно-практический центр Национальной академии наук Беларуси по материаловедению“, 220072 Минск, Беларусь
[3] Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: smagina@isp.nsc.ru

Поступила в Редакцию 26 марта 2025 г.
В окончательной редакции 23 июня 2025 г.
Принята к публикации 23 июня 2025 г.

Проведен сравнительный анализ структурных и люминесцентных характеристик наноструктур с квантовыми точками, созданными в процессе эпитаксии Ge на Si(100) в условиях облучения ионами Ge^+ с энергией ~ 2 кэВ и без него. Установлено, что облучение ионами Ge^+ в процессе гетероэпитаксии способствует увеличению интенсивности фотолюминесценции в 3 раза по сравнению со структурами, созданными без ионного облучения. Для облученных образцов обнаружено смещение максимума полосы фотолюминесценции GeSi квантовых точек на ~ 25 мэВ в низкоэнергетическую область. На основе анализа температурных зависимостей спектров фотолюминесценции в диапазоне 5–300 K определены энергии активации температурного гашения фотолюминесценции квантовых точек.

Ключевые слова: GeSi квантовые точки, эпитаксия, ионное облучение, фотолюминесценция.

DOI: 10.61011/FTP.2025.02.60977.7726

1. Введение

Основная проблема в создании высокоэффективных источников излучения на кремнии связана с его непрямозонной энергетической структурой. Одной из перспективных систем, способных решить эту проблему, является гетеросистема Ge/Si с квантовыми точками (КТ) [1–5]. Однако обычные эпитаксиальные структуры с GeSi КТ не дают заметного выигрыша в скорости излучательной рекомбинации. Одним из направлений увеличения эффективности излучения структур, основанных на кремнии, является введение дефектов различного типа, созданных ионным облучением [6–9]. В зависимости от энергии ионов, дозы облучения, типа ионов и температуры отжига могут образовываться комплексы дефектов, излучающие свет на различных длинах волн в инфракрасной области спектра. Например, при температурах отжига ниже 600 °C в спектрах фотолюминесценции (ФЛ) доминируют линии комплексов точечных дефектов, в том числе так называемых „W“-, „X“-, „G“- и „S“-центров [5,10–13]. Системы на основе этих центров в кремнии использовались для создания светодиодов в криогенных оптоэлектронных схемах. Имплантация ионов Er^+ [14] и Si^+ [15] в кремний с последующим отжигом структур позволила получить вариант светодиодов с дислокационной электролюминесценцией, работающих при комнатной температуре. Также предпринимаются попытки использовать люминесценцию {113} дефектов, генерируемых ионами O^+ и излучающих на длине волны 1.37 мкм [9]. Ранее в работе [16] нами была получена люминесценция в ближнем ИК диапазоне на структурах, синтезированных с помощью ионной имплантации германия в кремний (энергия ионов — 80 кэВ, доза облучения — 10^{15}см$^{-2}$, термический отжиг — (600–800 °C)), которая наблюдалась вплоть до комнатной температуры. Было показано, что излучение структур, отожженных в оптимальных условиях, многократно превышает интенсивность излучения эпитаксиальных структур с GeSi КТ, полученными без ионного облучения. Структурные исследования позволили отнести сигнал к Ge нанокластерам, формирующимся в результате отжига облученных структур и содержащим оптически-активные дефектные центры. Проведенные исследования мощностной и температурной зависимости ФЛ показали, что пик ФЛ при ~ 0.79 эВ характеризуется большой (~ 330 мэВ) энергией активации температурного гашения ФЛ и практически линейной зависимостью интенсивности ФЛ от мощности лазерного возбуждения, что типично для прямых оптических переходов. Похожие структуры с GeSi КТ, содержащими центры излучательной рекомбинации ([110]-расщепленные междоузлия), были получены в университете Линца [17,18] при применении облучения ионами Ge^+ во время роста КТ. За счет высокой эффективности излучательной рекомбинации

и прямых оптических переходов интенсивность излучения возрастала на два порядка по сравнению со структурами, полученными без ионного облучения, и наблюдался эффект лазерной генерации [18]. Авторы работы связывают полученные результаты с введением в слои КТ [110]-расщепленных междоузлий. При этом никак не обсуждаются эффекты, связанные с изменением параметров КТ, таких как размер, плотность, состав, которые могут прояснить роль квантовых ограничений носителей заряда в нульмерных структурах. В связи с этим актуальным является проведение дополнительных исследований для установления влияния ионного облучения на формирование КТ и их параметры, и уточнение природы усиления ФЛ в структурах с ионным облучением.

В настоящей работе исследованы гетероструктуры Ge/Si с КТ, созданные с помощью модифицированного метода молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) с одновременным облучением ионами Ge^+ с энергией ~ 2 кэВ. Метод позволяет контролируемо менять энергию ионов Ge^+ и время ионного воздействия в процессе роста путем приложения отрицательного электрического потенциала к кремниевой подложке. В работе представлены новые результаты по сравнительному анализу температурной зависимости фотолюминесценции Ge/Si-наноструктур с КТ, выращенными в условиях ионного облучения и без него.

2. Методика эксперимента

Структуры Ge/Si (с ионным обучением и без него) выращивались в установке МЛЭ SIVA-21 фирмы Riber. Подложки Si(100) загружались в камеру установки после стандартной процедуры химической очистки [19]. Завершением процедуры очистки поверхности подложки являлось удаление защитного слоя SiO_2 при температуре 750 °C в слабом потоке кремния. Далее на подложку осаждался буферный слой Si (~ 100 нм) при постепенном повышении температуры роста от 500 до 600 °C. Затем на поверхности буферного слоя выращивалась сама структура, которая представляла собой либо открытый слой германия (для исследования морфологии поверхности), либо стек из 10 слоев GeSi КТ. Стек из КТ формировался последовательным осаждением слоев германия (каждый слой толщиной ~ 0.8 нм), чередующихся со слоями кремния. Температура роста германия составляла 500 °C. Прослойки кремния толщиной ~ 15 нм формировались при температуре, которую постепенно поднимали от 500 до 600 °C. На последней стадии роста структура закрывалась слоем кремния толщиной 40 нм, также с поднятием температуры от 500 до 600 °C. Повышение температуры роста разделяющих слоев Si до 600 °C предпринято для уменьшения количества дефектов, которые могут стать центрами безызлучательной рекомбинации. Осаждение слоев Ge проводилось двумя способами: обычная МЛЭ (образец 1) и МЛЭ с одновременным облучением ионами Ge^+ с энергией ~ 2 кэВ (образец 2). Облучение ионами германия осуществлялось путем приложения отрицательного электрического потенциала (-2 кВ) к подложке. Приложенное напряжение в свою очередь ускоряло ионы Ge^+, вылетающие из электронно-лучевого испарителя по направлению к подложке.

Морфологию поверхности выращенных однослойных структур с КТ исследовали с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) SolverPRO фирмы NT-MDT. Исследования ФЛ наноструктур Ge/Si проводились на спектроскопическом комплексе на базе дифракционного монохроматора МДР-23У, обеспечивающего обратную линейную дисперсию 26 Å/мм. В качестве источника возбуждающего излучения использовался твердотельный лазер, работающий на длине волны 405 нм. Оптические сигналы детектировались охлаждаемым до температуры ~ 80 K Ge $p-i-n$ детектором типа EO-817H. Температурные измерения в диапазоне $5-300$ K осуществлялись с использованием специального оптического криостата модели ARS CS202E-DMX.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показаны типичные АСМ-изображения поверхности с трехмерными островками, полученными после осаждения 0.8 нм Ge на поверхность Si(100), для двух типов эксперимента: *a* — обычная МЛЭ и *b* — эпитаксия с ионным облучением. В экспериментах без ионного облучения плотность нанооостровков составляла $\sim 4 \cdot 10^{10}$ см$^{-2}$, в то время как с ионным облучением наблюдалось увеличение плотности нанооостровков в ~ 1.5 раза ($\sim 6 \cdot 10^{10}$ см$^{-2}$). Средний поперечный размер основания трехмерных островков в случае эпитаксии без ионного облучения в 1.2 раза меньше (21.5 ± 2 нм), чем средний размер нанооостровков (25 ± 5 нм), полученных при ионном облучении. Средние высоты островков составляли: 2.26 ± 0.3 нм и 2.4 ± 0.4 нм для обычной МЛЭ и МЛЭ с ионным облучением соответственно. В обоих типах ростовых экспериментов трехмерные островки имели форму *hut*-кластеров [20,21], однако в случае эпитаксии без ионного облучения нанооостровки имели более вытянутую (прямоугольную) форму основания.

Влияние ионного облучения на свойства нанооостровков (квантовых точек) прослеживается и в их люминесцентных свойствах. Как видно из спектров ФЛ (рис. 2), полученных при температуре 78 K, в диапазоне энергий от 0.7 до 0.9 эВ присутствуют широкие полосы, связанные с излучением GeSi КТ. Спектральное положение полосы ФЛ в структурах без ионного облучения ~ 0.8 эВ (рис. 2, образец 1). Для образцов, выращенных в условиях ионного облучения (рис. 2, образец 2), полоса ФЛ от КТ сдвигается в более низкоэнергетическую область ~ 0.775 эВ. Смещение полосы ФЛ от квантовых точек на $\Delta E \approx 25$ мэВ в более низкоэнергетическую область в

случае с ионным облучением может быть связано как с увеличением размеров КТ, так и с образованием дефектов, дающих более глубокие энергетические уровни, чем уровни носителей заряда в КТ, созданных без ионного облучения. Интенсивность полосы ФЛ от КТ в облученных структурах (рис. 2, образец 2) оказалась в 3 раза выше интенсивности полосы ФЛ от КТ в необлученных структурах. Очевидно, что имплантация ионов Ge^+, ускоренных напряжением -2 кВ, способствует усилению интенсивности излучения КТ.

В спектрах ФЛ в области энергии ~ 0.932 эВ присутствует дополнительная полоса, которая исчезает при температурах > 125 K. Эта полоса может быть связана с дефектами типа {113}, генерируемыми ионным облучением [22–24]. Температурные зависимости спектров ФЛ для Ge/Si гетероструктур с КТ, созданными с ионным облучением и без него, показали, что с увеличением температуры измерения для обоих типов структур происходит гашение ФЛ от GeSi КТ (рис. 3).

Анализ температурных зависимостей интегральной интенсивности ФЛ в диапазоне от 0.7 до 0.9 эВ прово-

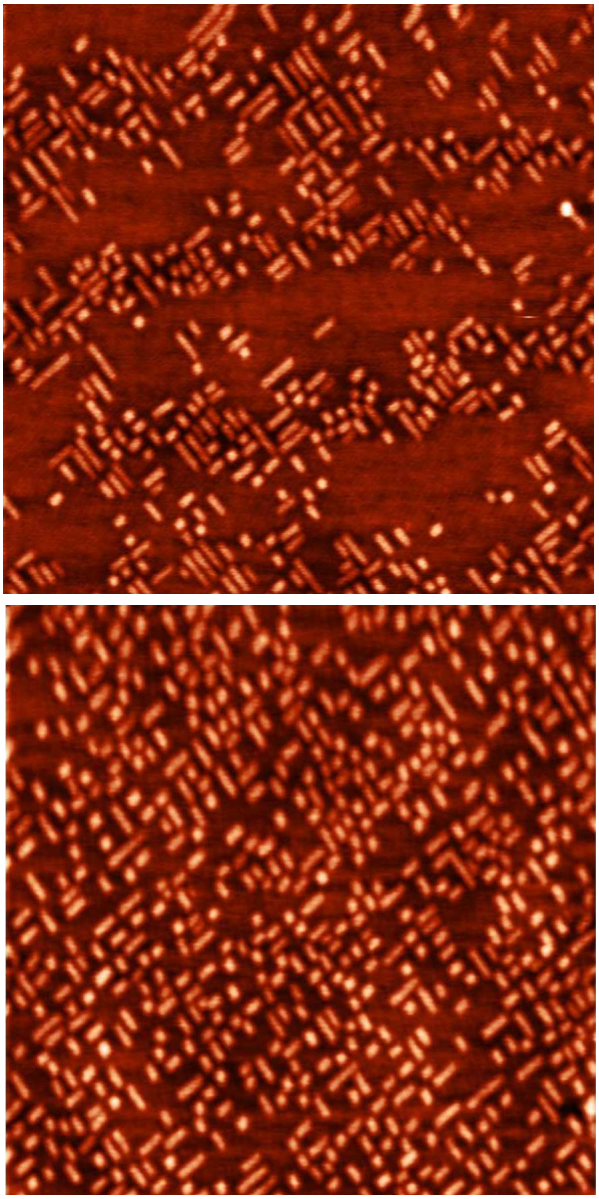


Рис. 1. АСМ-изображения (1×1 мкм) поверхности с трехмерными островками, полученными при осаждении 0.8 нм Ge на подложку Si(100) при температуре 550 °C, для двух типов экспериментов: *a* — МЛЭ Ge на Si; *b* — МЛЭ с облучением ионами Ge^+. Энергия ионов ~ 2 кэВ.

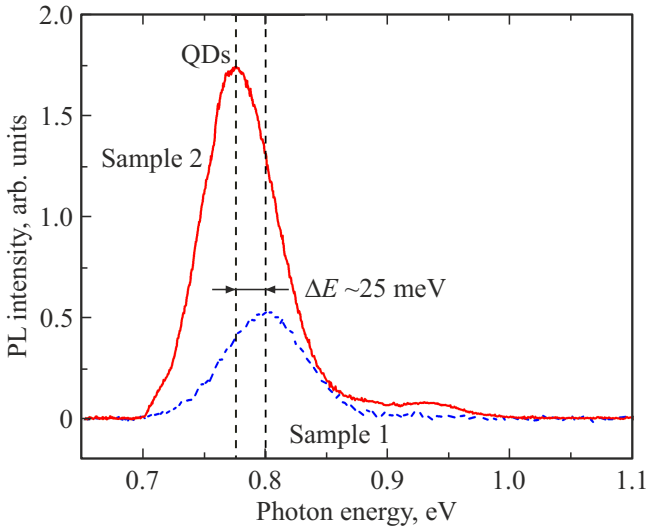


Рис. 2. Спектры ФЛ от 10-слойных структур с GeSi КТ, выращенных при 500°C: образец 1 — молекулярно-лучевая эпитаксия, образец 2 — МЛЭ с одновременным облучением ионами Ge^+ (энергия ~ 2 кэВ). Спектры измерены при 78 K. Плотность мощности лазерного возбуждения ~ 8.5 Вт/см^2. Использовался лазер с длиной волны 405 нм.

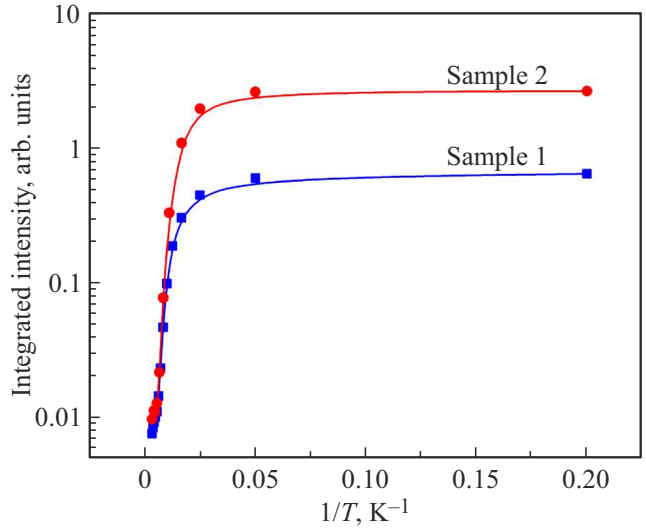


Рис. 3. Температурная зависимость изменения интенсивности полос ФЛ от квантовых точек, созданных с одновременным облучением ионами Ge^+ с энергией ~ 2 кэВ (образец 2) и без него (образец 1).

дился с использованием выражения [25]:

$$I(T) = I_0/[1 + A\exp(-E_a/k_{\mathrm{B}}T)], \qquad (1)$$

где I_0 — максимальная интенсивность ФЛ, I — интенсивность полосы при температуре эксперимента, A — подгоночный параметр, k_{B} — постоянная Больцмана, E_a — энергия активации.

В результате были определены характерные энергии активации для процессов излучательной рекомбинации, составившие $E_a \sim 47$ мэВ и $\sim E_a^* \sim 72.7$ мэВ для образцов 1 и 2 соответственно. Разница энергий активации для двух типов структур составляет 25.7 мэВ. Интересно отметить, что полученная величина практически совпадает со смещением максимума полосы излучения GeSi КТ, обнаруженным для структур, созданных при ионном облучении (рис. 2). Это указывает на то, что изменение характерных энергий излучательных переходов ΔE в исследуемых структурах, вероятнее всего, связано с изменением глубины залегания уровней электронных состояний в слоях КТ.

Проведенные исследования показали более высокую температурную устойчивость электронных оптических переходов вплоть до комнатной температуры (~ 300 K) и, соответственно, более высокое значение энергии активации для наноструктур с GeSi КТ, создаваемых в условиях облучения ионами Ge^+ (образец 2). Этот результат согласуется с данными, полученными в работах австрийских исследователей [17,18] для гетероструктур с GeSi КТ, которые формировались методом МЛЭ при одновременном облучении ионами Ge^+. Авторы этих работ выдвигают гипотезу, что при облучении ионами Ge^+ в слоях с КТ создаются глубокие центры, через которые идет эффективная излучательная рекомбинация. Следует отметить, что в указанных работах энергия активации температурного гашения ФЛ составила ~ 350 мэВ для структур с ионным облучением, что, по-видимому, является проявлением зависимости энергии активации от интенсивности фотовозбуждения [26]. Тогда как для структур, созданных без ионного облучения, энергия активации равна ~ 80 мэВ. В работах австрийских исследователей используют метод микро-ФЛ и большую плотность мощности фотовозбуждения, чем в нашей работе. При этом они сообщают, что в этих условиях энергия активации определяется термическим выбросом дырок в валентную зону кремния [17]. При малых уровнях лазерного фотовозбуждения энергия активации может определяться термическим выбросом электронов в зону проводимости кремния. Соответственно, в наших экспериментах, скорее всего, действительно происходит заглубление уровней электронных состояний в слоях КТ.

4. Заключение

В результате проведенных исследований показано, что облучение ионами Ge^+ с энергией ~ 2 кэВ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии приводит к увеличению плотности КТ. Установлено, что ионное облучение, используемое в процессе гетероэпитаксии Ge на Si, способствует увеличению интенсивности ФЛ в 3 раза по сравнению с образцами, выращенными без него. Обнаружено смещение максимума ФЛ от GeSi КТ на 25 мэВ в длинноволновую область излучения для образцов, созданных в условиях роста с ионным облучением. Смещение может быть связано как с увеличением размеров КТ, так и с образованием дефектов, дающих более глубокие энергетические уровни, чем уровни носителей заряда на КТ, созданных без ионного облучения. На основе полученных данных о температурной зависимости изменения интенсивности ФЛ были определены энергии активации температурного гашения полосы ФЛ, связанной с излучательной рекомбинацией носителей заряда в КТ. Энергии активации составили ~ 47 и ~ 72.7 мэВ для образцов, созданных в процессе эпитаксии без облучения и эпитаксии с облучением ионами Ge^+ соответственно. Полученные результаты свидетельствуют о более высокой температурной стабильности фотолюминесценции GeSi КТ, созданных в условиях ионного облучения.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ (грант № 25-22-00424).

Благодарности

Авторы работы выражают благодарность ГПНИ „Материаловедение, новые материалы и технологии“, подпрограммы „Наноструктура“ за люминесцентные измерения, которые проводились в рамках задания 2.2.1 (Беларусь), а также В.А. Армбристеру за выращивание структур Ge/Si методом молекулярно-лучевой эпитаксии, ЦКП „Наноструктуры“ ИФП СО РАН за предоставление возможностей использования технологического и измерительного оборудования.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

[1] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтлендер. ФТП, **34**, 1281 (2000).
[2] A.I. Yakimov, A.V.Dvurechenskii, V.V. Kirienko, A.I. Nikiforov. Appl. Phys. Lett., **80**, 4783 (2002).
[3] K. Eberl, M.O. Lipinski, Y.M. Manz, W. Winter, N.Y. Jin-Phillipp, O.G. Schmidt. Physica E, **9**, 164 (2001).
[4] A.A. Tonkikh, G.E. Cirlin, V.G. Talalaev, N.D. Zakharov, P. Werner. Phys. Status Solidi A, **203**, 1390 (2006).
[5] M. Brehm, M. Grydlik. Nanotechnology, **28**, 392001-1 (2017).

[6] S. Pizzini, E. Leonti, S. Binetti, M. Acciarri, A. Le Donne, B. Pichaud. Sol. St. Phenomena, **273**, 95 (2004).
[7] В.И. Вдовин, Л.И. Федина, А.К. Гутаковский, А.Е. Калядин, Е.И. Шек, К.Ф. Штельмах, Н.А. Соболев. Кристаллография, **66**, 597 (2021).
[8] Н.А. Соболев, А.Е. Калядин, К.Ф. Штельмах, П.Н. Аруев, В.В. Забродский, Е.И. Шек. ФТП, **56**, 904 (2022).
[9] А.Е. Калядин, К.Ф. Штельмах, П.Н. Аруев, В.В. Забродский, К.В. Карабешкин, Е.И. Шек, Н.А. Соболев. ФТП, **54**, 580 (2020).
[10] S.M. Buckley, A.N. Tait, G. Moody, B. Primavera, S. Olson, J. Herman, K.L. Silverman, S.P. Rao, S.W. Nam, R.P. Mirin, J.M. Shailine. Opt. Express, **28**, 16057 (2020).
[11] D.D. Berhanuddin, N.E.A. Razak, M.A. Lourenġo, B.Y. Majlisl, K.P. Homewood. Sains Malaysiana, **48**, 1251 (2019).
[12] L. Ouyang, Ch. Wang, X. Feng, J. Yang, M. Zhou, F. Qiu, R. Wang, Yu. Yang. Opt. Express, **26**, 15899 (2018).
[13] A. Nikolskaya, D. Korolev, A. Mikhaylov, D. Pavlov, A. Sushkov, E. Okulich, A. Chizhova, A. Konakov, P. Yunin, A. Okhapkin, S. Kraev, A. Yablonskiy, D. Yurasov, V. Zakharov, B. Andreev, D. Tetelbaum. J. Appl. Phys., **135**, 215703 (2024).
[14] Н.А. Соболев, А.М. Емельянов, В.В. Забродский, Н.В. Забродская, В.Л. Суханов, Е.И. Шек. ФТП, **41**, 635 (2007).
[15] Н.А. Соболев, А.Е. Калядин, М.В. Коновалов, П.Н. Аруев, В.В. Забродский, Е.И. Шек, К.Ф. Штельмах, А.Н. Михайлов, Д.И. Тетельбаум. ФТП, **50**, 241 (2016).
[16] V.A. Zinovyev, A.F. Zinovieva, Zh.V. Smagina, A.V. Dvurechenskii, V.I. Vdovin, A.K. Gutakovskii, L.I. Fedina, O.M. Borodavchenko, V.D. Zhivulko, A.V. Mudryi. J. Appl. Phys., **130**, 153101 (2021)
[17] M. Grydlik, M.T. Lusk, F. Hackl, A. Polimeni, T.Fromherz, W. Jantsch, F. Schaffler, M. Brehm. Nano Lett., **16**, 6802 (2016).
[18] M. Grydlik, F. Hackl, H. Groiss, M. Glaser, A. Halilovic, T. Fromherz, W. Jantsch, F. Schaffler, M. Brehm. ACS Photonics, **3**, 298 (2016).
[19] Zh.V. Smagina, N.P. Stepina, V.A. Zinovyev, P.L. Novikov, P.A. Kuchinskaya, A.V. Dvurechenskii. Appl. Phys. Lett., **105**, 153106 (2014).
[20] Y.-W. Mo, D.E. Savage, B.S. Swartzentruber, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., **65**, 1020 (1990).
[21] Л.В. Арапкина, В.А. Юрьев. УФН, **180**, 3 (2010).
[22] N.A. Sobolev, A.E. Kalyadin, E.I. Shek, K.F. Shtel'makh, V.I. Vdovin, A.K. Gutakovskii, L.I. Fedina. Phys. Status Solidi A, **214**, 1700317 (2017).
[23] Yang Yu, Wang Chong, Yang Rui-Dong, Li Liang, XiongFei, BaoJi-Ming. Chin. Phys. B, **18**, 4906 (2009).
[24] S. Coffa, S. Libertino, C. Spinella. Appl. Phys. Lett., **76**, 321 (2000).
[25] V.A. Zinovyev, A.F. Zinovieva, P.A. Kuchinskaya, Zh.V. Smagina, V.A. Armbrister, A.V. Dvurechenskii, O.M. Borodavchenko, V.D. Zhivulko, A.V. Mudryi. Appl. Phys. Lett., **110**, 102101 (2017).
[26] D.J. Lockwood, L. Tsybeskov. Phys. Status Solidi C, **8**, 2870 (2011).

Редактор А.Н. Смирнов

Photoluminescence of Ge/Si heterostructures with quantum dots created by epitaxy from ion-molecular beams

Zh.V. Smagina[1], V.A. Zinovyev[1], A.V. Mudryi[2], O.M. Borodavchenko[2], A.O. Bazhenov[1,3], A.V. Dvurechenskii[1,3], V.D. Zhivulko[2]

[1] Rzhanov Institute of Semiconductor Physics, Siberian Branch of Russian Academy of Sciences, 630090 Novosibirsk, Russia
[2] Scientific-Practical Material Research Centre of the National Academy of Sciences of Belarus, 20072 Minsk, Belarus
[3] Novosibirsk State University, 630090 Novosibirsk, Russia

Abstract The comparative analysis of the structural and luminescent characteristics of nanostructures with quantum dots created during Geepitaxy on Si(100) under conditions of irradiation with and without Ge^+ ions with an energy of ~ 2 keV has been carried out. It was found that irradiation with Ge^+ ions used in the heteroepitaxy process increases the photoluminescence intensity by 3 times compared with samples created without ion irradiation. In the irradiated samples, a shift of the maximum of the photoluminescence band of Ge Si quantum dots by ~ 25 meV to a lower-energy region was detected. Based on the analysis of the temperature dependences of photoluminescence spectra in the range of 5−300 K, the activation energies of the thermal quenching of the band associated with quantum dots are determined.