

Зависимость люминесцентных свойств упорядоченных групп Ge(Si) наноостровков от параметров ямок на структурированной поверхности подложки „кремний на изоляторе“

© Ж.В. Смагина¹, В.А. Зиновьев¹, М.В. Степихова², А.В. Перетокин^{2,3}, С.А. Дьяков⁴,
Е.Е. Родякина^{1,5}, А.В. Новиков^{2,3}, А.В. Двуреченский^{1,5}

¹ Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

² Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 Нижний Новгород, Россия

³ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

⁴ Сколковский институт науки и технологий, 143005 Москва Россия

⁵ Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: smagina@isp.nsc.ru

Поступила в Редакцию 24 июля 2021 г.

В окончательной редакции 2 августа 2021 г.

Принята к публикации 2 августа 2021 г.

Представлены результаты исследований люминесцентных свойств структур с Ge(Si) наноостровками (квантовыми точками), в которых структурированная поверхность подложки „кремний на изоляторе“ служила как для пространственного упорядочения квантовых точек, так и для формирования двумерного фотонного кристалла. Показано, что при определенном выборе параметров структурированной подложки (диаметра отверстий и периода их расположения) наблюдается усиление интенсивности сигнала люминесценции квантовых точек в ближнем инфракрасном диапазоне. Обнаруженный эффект связывается с взаимодействием излучения пространственно упорядоченных квантовых точек с модами фотонного кристалла. Эффект усиления сигнала люминесценции сохраняется вплоть до комнатных температур.

Ключевые слова: SiGe-гетероструктуры, квантовые точки, пространственное упорядочение, люминесценция, фотонный кристалл.

DOI: 10.21883/FTP.2021.12.51707.9722

1. Введение

Управление пространственным упорядочением самоформирующихся трехмерных наноостровков в процессе гетероэпитаксии является одним из важных условий их дальнейшего использования в различных приборных приложениях [1–4]. Наиболее широко используемым подходом для решения этой задачи является создание мест преимущественного зарождения наноостровков (далее для краткости — квантовых точек (КТ)) за счет предварительного структурирования поверхности подложки путем вытравливания массива ямок, упорядоченных в двумерную решетку [5,6]. При этом, варьируя параметры ямок (их глубину, размер, период расположения в плоскости роста), можно управлять зарождением КТ, создавая условия для формирования одиночных КТ (как на дне ямок, так и между ними) [7,8] или групп КТ, расположенных вокруг ямок [9,10]. Формирование массивов пространственно упорядоченных одиночных КТ или групп позволяет решать различные физические задачи. В частности, для гетеропары Ge/Si была продемонстрирована возможность усиления взаимодействия излучения Ge(Si) КТ с модами микрорезонатора двумер-

ного фотонного кристалла (ФК) за счет контролируемого позиционирования КТ в микрорезонаторе [3,11,12].

В последние годы значительно вырос интерес к исследованию взаимодействия излучения активной среды с различными модами ФК, в том числе с так называемыми модами „связанных состояний в континууме“ („bound states in the continuum“, ВИС-модами), которые характеризуются высокой добротностью [13,14]. Для обеспечения эффективного взаимодействия излучения Ge(Si) КТ с такими модами важно задать определенное пространственное расположение КТ внутри ФК [10,11]. Стандартным в этом случае является двухэтапный подход, когда на первом этапе формируется массив пространственно упорядоченных КТ, а на втором — ФК с контролируемым совмещением расположения КТ относительно отверстий ФК. Данный подход достаточно хорошо исследован и хорошо развиты методы пространственного позиционирования одиночных КТ на структурированной поверхности подложки [3,10,15,16].

Нами было показано, что в определенных случаях формирование ФК и массива пространственно упорядоченных Ge(Si) КТ может быть объединено в один этап [16,17]. Такой подход позволяет использовать одну и

ту же подложку с предварительно созданными глубокими ямками (отверстиями), как для роста пространственно упорядоченных КТ, так и для формирования фотонного кристалла. В рамках этого подхода для обеспечения эффективного взаимодействия излучения КТ с модами ФК требуется выполнение двух условий. Во-первых, необходимо реализовать зарождение КТ между ямками или по их периметру. Во-вторых, период расположения ямок, их глубина и форма после эпитаксиального роста КТ должны обеспечивать формирование двумерного ФК, имеющего оптически активные моды в спектральном диапазоне излучения упорядоченных КТ.

В работе [17] нами были получены эпитаксиальные структуры с пространственно упорядоченными Ge(Si) КТ, в которых выполнялись оба из вышеуказанных условий. Это позволило наблюдать существенное усиление интенсивности сигнала фотolumинесценции (ФЛ) КТ с характерными для фотонного кристалла узкими пиками, обусловленными взаимодействием излучения КТ с модами ФК [17]. Однако при встраивании КТ в ФК, в рамках одноэтапного подхода, было обнаружено, что с увеличением периода между отверстиями ФК сильно возрастает вероятность их зарастания в процессе формирования эпитаксиальной структуры. В результате спектры ФЛ от структур с периодом между отверстиями > 1 мкм перестают демонстрировать особенности, характерные для массивов КТ, встроенных в ФК [17].

Очевидно, что для решения указанной проблемы необходимо по возможности максимально увеличить диаметр отверстий, образующих ФК, но при этом параметры ФК должны обеспечивать пространственное упорядочение КТ и спектральное перекрытие оптически активных мод ФК с диапазоном излучения Ge(Si) КТ.

В данной работе нами проведены детальные исследования люминесцентных свойств пространственно упорядоченных Ge(Si) КТ, сформированных вокруг отверстий, образующих ФК, в зависимости от размера этих отверстий. Показано, что существует область параметров двумерного массива ямок (диаметров отверстий и периодов их расположения), при которых происходит формирование как упорядоченных групп Ge(Si) КТ, расположенных вокруг ямок, так и двумерного ФК, оптически активные моды которого попадают в полосу излучения Ge(Si) КТ. При этом происходит усиление сигнала фотolumинесценции КТ более чем на порядок величины. Установлено, что для структур с наибольшим диаметром ямок, полученных в наших экспериментах, усиленный сигнал ФЛ от КТ с характерными для ФК узкими пиками наблюдается вплоть до комнатной температуры.

2. Методика эксперимента

Для создания структур с пространственно упорядоченными Ge(Si) КТ, встроенными в двумерные ФК, использовались подложки „кремний-на-изоляторе“ („silicon on insulator“, SOI), толщина верхнего слоя

Si в которых составляла 90 нм, а скрытого окисла SiO₂ — 3 мкм. С помощью электронной литографии и плазмохимического травления на подложках SOI была создана структурированная поверхность в виде двумерного массива ямок глубиной ~ 90 нм, расположенных в узлах квадратной решетки. Как было показано ранее, ямки такой глубины могут быть использованы для контролируемого зарождения Ge(Si) КТ между ямками или по их периметру (см. работы [18–21]). Ямки имели круглую форму и располагались в узлах квадратной решетки с периодами от 0.5 до 2 мкм. Помимо периода расположения ямок также варьировался их диаметр за счет изменения дозы экспонирования в процессе электронной литографии. При этом диапазон изменения диаметра ямок на структурированной поверхности составлял от 60 до 190 нм. Формирование упорядоченных Ge(Si) КТ на структурированной поверхности осуществлялось методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Детали роста структур с упорядоченными Ge(Si) КТ данного типа подробно описаны в работах [21,22]. В данной работе формирование массива Ge(Si) КТ достигалось за счет осаждения слоя Ge толщиной 4.3 монослоя (МС) (1 МС = 0.14 нм) на структурированную поверхность подложки SOI. Для увеличения интенсивности сигнала люминесценции выращивалась многослойная структура, содержащая 4 слоя вертикально совмещенных Ge(Si) КТ. Толщина прослойки Si между соседними слоями КТ составляла 15 нм, что обеспечивало их вертикальное упорядочение. Последний, четвертый слой КТ кремнием не зарастивался, что позволяло анализировать расположение КТ в плоскости роста структуры. Температура, при которой проводился рост активной части структуры с Ge(Si) КТ, составляла 700°C, а скорость осаждения Ge — 0.005 нм/с. Были выращены две многослойные структуры A и B с различной суммарной толщиной слоев над скрытым окислом. По данным эллипсометрических измерений, толщина структуры A составляла 260 нм, а структуры B — 290 нм. Структуры также отличались диаметром ямок. Для структуры A диаметр ямок изменялся от 60 до 110 нм, а для структуры B — от 170 до 190 нм.

Морфология выращенных структур исследовалась с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Люминесцентные свойства структур исследовались методом микро-фотolumинесценции (микро-ФЛ) с высоким пространственным и спектральным разрешением. Сигнал микро-ФЛ возбуждался непрерывным лазером на длине волны 532 нм. Лазерное излучение фокусировалось на образец в пятно ~ 10 мкм объективом Mitutoyo M Plan APO 10x (числовая апертура NA = 0.26). Измерения проводились в геометрии нормального падения возбуждающего луча лазера и сбора детектируемого сигнала. Сигнал микро-ФЛ детектировался охлаждаемым Ge-детектором с помощью фурье-спектрометра высокого разрешения Bruker IFS 125HR. Измерения выполнялись при температурах 77 и 300 К. Для охлаждения образца использовался проточный криостат.

Для анализа спектров микро-ФЛ и структуры оптически активных мод фотонного кристалла, образованного ямками, его зонная структура рассчитывалась методом матрицы рассеяния в резонансном приближении [14,23].

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

В работе [17] нами было проведено исследование зависимостей пространственного расположения Ge(Si) КТ и их люминесцентных свойств от периода расположения глубоких ямок (отверстий), образующих фотонный кристалл. В данной работе основное внимание уделено зависимости люминесцентных свойств пространственно

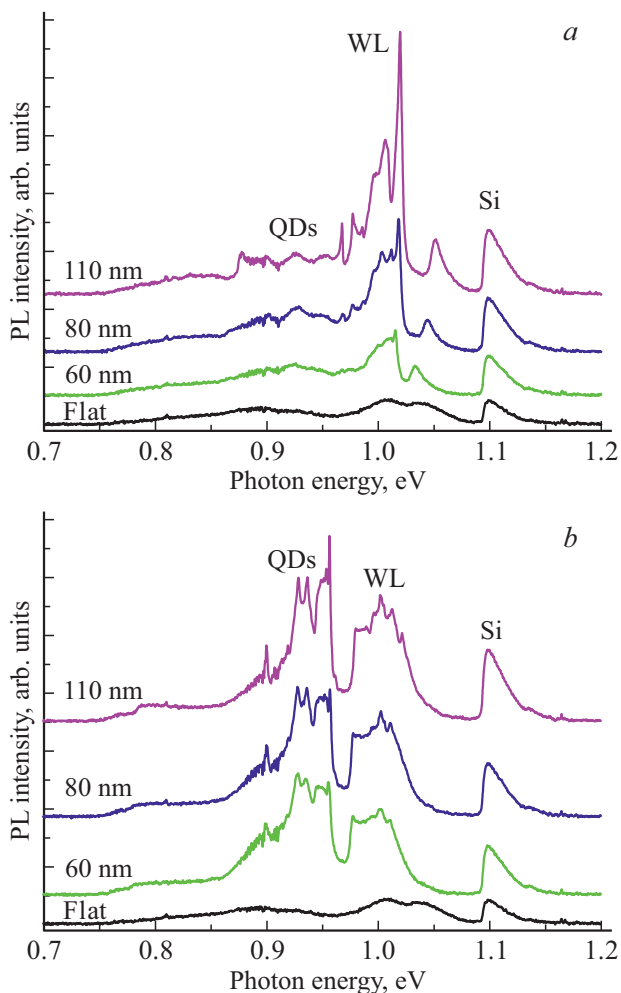


Рис. 1. Спектры микро-ФЛ структуры А для периодов расположения ямок в квадратной решетке 0.7 мкм (а) и 0.8 мкм (б). Цифры показывают средний диаметр ямок в областях, для которых получен соответствующий спектр. Текстовыми метками на рисунке отмечены сигналы ФЛ от Si-слоев с участием ТО-фононов (Si), Ge-смачивающего слоя (WL), Ge(Si) КТ (QDs). Текстовой меткой „flat“ отмечены спектры микро-ФЛ от неструктурированных областей. Спектры измерены при 77 К. Для наглядности спектры разнесены по вертикали. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

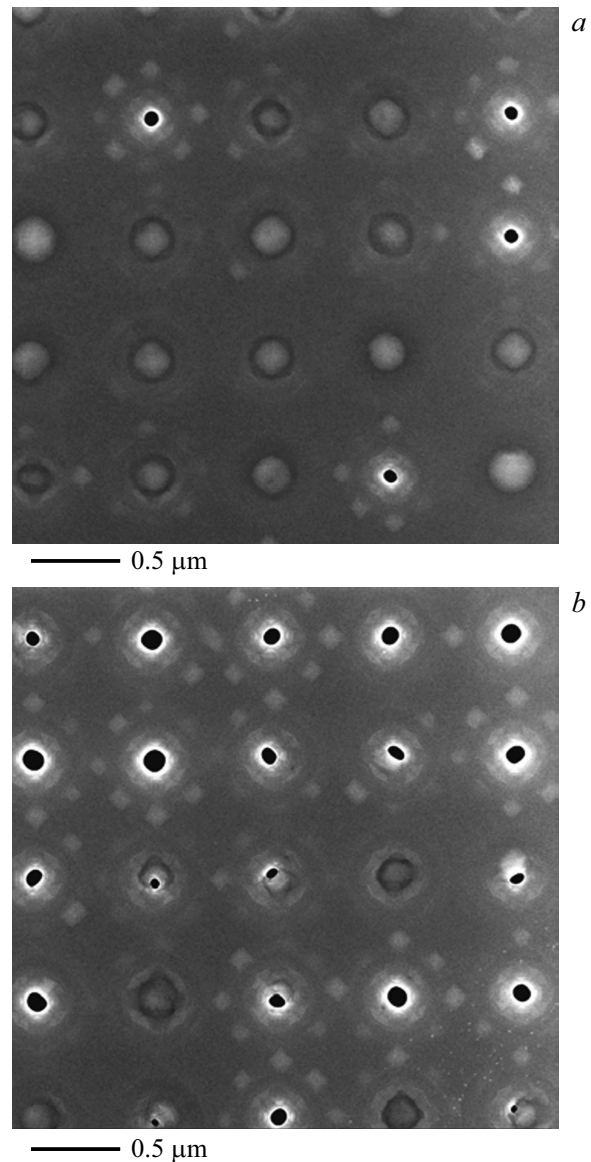


Рис. 2. СЭМ-изображения массивов Ge(Si) КТ, полученных при осаждении 4.3 монослоев Ge на подложку SOI с ямками, расположенными в узлах квадратной решетки с периодом 0.7 мкм. Средний диаметр ямок 60 нм (а) и 110 нм (б).

упорядоченных Ge(Si) КТ, сформированных вокруг отверстий, образующих ФК, от диаметра этих отверстий при фиксированных периодах между ними.

На рис. 1 показаны спектры микро-ФЛ структуры А для двух периодов решетки расположения ямок (0.7 мкм (а) и 0.8 мкм (б)) в зависимости от диаметра ямок. Из представленного рисунка хорошо видно, что по мере увеличения диаметра ямок в спектрах микро-ФЛ наблюдается появление узких интенсивных пиков, как в области излучения Ge(Si) КТ (0.85–0.95 эВ) — для периода 0.8 мкм (рис. 1, б), так и в области излучения смачивающего слоя (0.95–1.07 эВ) — для периода 0.7 мкм (рис. 1, а). Причем эффект усиления интенсивности сигнала ФЛ тем больше, чем больше диаметр ямок.

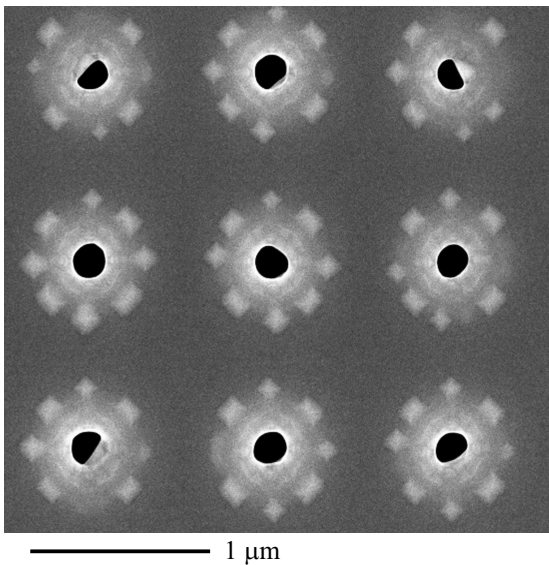


Рис. 3. СЭМ-изображение массива пространственно упорядоченных групп Ge(Si) КТ, полученных при осаждении 4.3 монослоев Ge на подложку SOI с ямками, расположенными в узлах квадратной решетки с периодом 1 мкм (структура B). Скорость осаждения Ge 0.05 МС/с, температура роста 700°С. Диаметр ямки ~ 180 нм.

Связь наблюдаемых узких линий в спектрах микро-ФЛ с модами ФК подтверждается расчетами дисперсионных зависимостей мод ФК [17].

Из анализа СЭМ-изображений исследуемых структур следует, что при малом диаметре ямок (~ 60 нм), на начальном этапе формирования структуры после осаждения буферного слоя Si толщиной 100 нм [17], зарождение Ge(Si) КТ на структурированной поверхности происходит не только по периметру ямок, но и внутри них (рис. 2, a). Соответственно уменьшается доля незакрытых ямок, которые могут сформировать фотонный кристалл. В результате образуется „дефектный“ ФК (под дефектом здесь понимается отсутствие открытой ямки в узле квадратной решетки), в спектрах микро-ФЛ которого практически отсутствуют узкие пики, обусловленные взаимодействием излучения Ge(Si) КТ (рис. 1, b) и смачивающего слоя Ge (рис. 1, a) с модами ФК. При увеличении диаметра отверстий до ~ 110 нм доля незакрытых ямок заметно возрастает (рис. 2, b). В этом случае имеет место формирование более совершенного ФК, в спектрах микро-ФЛ которого наблюдается серия узких пиков (рис. 1), обусловленных взаимодействием излучения активной среды с модами этого ФК.

Наблюдаемые изменения в спектрах микро-ФЛ при варьировании диаметра ямок могут быть обусловлены изменением оптических свойств ФК при изменении его геометрических параметров, а именно отношения r/a , где r — радиус отверстий, a — период ФК. Однако проведенный нами анализ зависимости положения пиков в спектрах микро-ФЛ от диаметра отверстий и результаты расчетов оптических мод ФК позволяют нам заключить,

что фактор, связанный с изменением геометрических параметров ФК, не является определяющим, так как при малых (< 0.1) значениях r/a , реализуемых в исследованных структурах, этот параметр оказывает слабое влияние на свойства ФК.

Необходимо отметить, что рост интенсивности сигнала микро-ФЛ, связанный с взаимодействием излучения КТ с модами ФК, образованного ямками, для структуры A с диаметром ямок, лежащем в диапазоне 60–110 нм, наблюдается только при достаточно низких температурах измерения (~ 77 К). Увеличение исходного диаметра ямок (структура B с диаметром ямок 180 нм, рис. 3) при периоде их расположения в квадратной решетке 1 мкм приводит к тому, что эффект роста интенсивности сигнала ФЛ и наличие узких пиков, связанных с взаимодействием излучения Ge(Si) КТ с модами ФК, образованного двумерной решеткой ямок, сохраняется вплоть до комнатных температур (рис. 4).

Более высокая температурная стабильность сигнала ФЛ в структуре B может быть обусловлена двумя

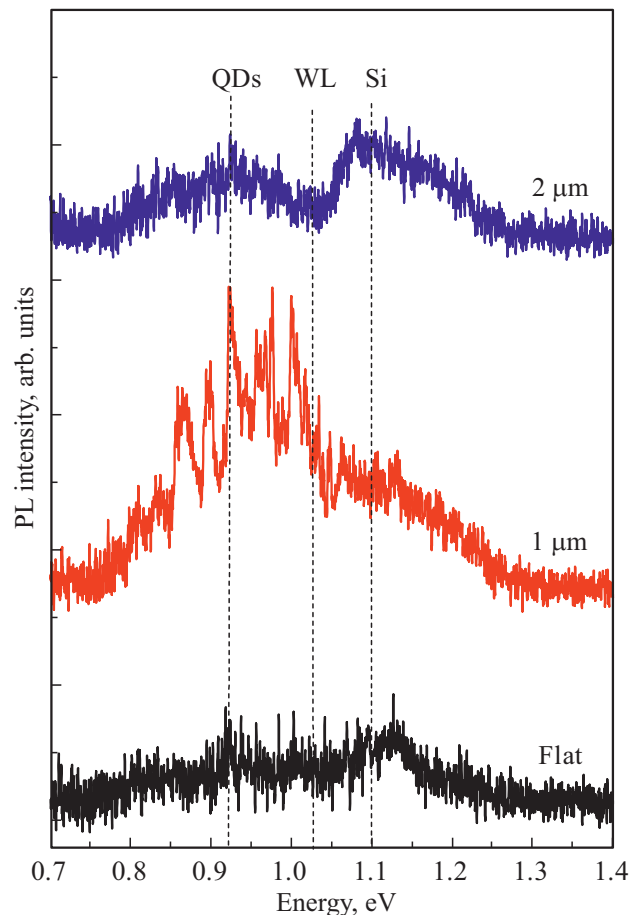


Рис. 4. Спектры микро-ФЛ структуры B от неструктурированной области (flat) и областей с периодом расположения ямок 1 и 2 мкм. Диаметр ямок 180 нм. На рисунке отмечено спектральное положение сигналов ФЛ от Si (Si), смачивающего слоя (WL) и КТ (QDs). Для наглядности спектры разнесены по вертикали. Спектры измерены при 300 К. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

причинами. Во-первых, как было уже отмечено выше, с увеличением диаметра ямок вероятность их зарастания при росте структуры значительно уменьшается и зарождение КТ начинает происходить только по периметру ямок (рис. 3). В этих условиях формируется практически бездефектный ФК со встроенными в него группами Ge(Si) КТ. Во-вторых, это связано с тем, что с увеличением соотношения r/a уменьшается количество мод ФК, которые спектрально перекрываются с сигналом от КТ. Это ведет к увеличению интенсивности в спектрах ФЛ каждой из линий, связанной с конкретной модой ФК. Данное предположение подтверждается тем, что сигнал ФЛ при комнатной температуре наблюдается только в области с расположением ямок с периодом 1 мкм и отсутствует в области с большим периодом расположения ямок (рис. 4).

4. Заключение

Показано, что структурированная поверхность с массивами глубоких ямок, расположенных в узлах квадратной решетки, может служить основой для создания массивов пространственно упорядоченных Ge(Si) КТ и проявлять оптические свойства, характерные для двумерного ФК. В результате проведенных измерений методом микро-фотолюминесценции определены области параметров структурированной поверхности (диаметр ямок и период их расположения), обеспечивающие усиление интенсивности излучения пространственно упорядоченных групп Ge(Si) КТ за счет взаимодействия с модами ФК. Эффект усиления сохраняется в области температур измерения от 77 до 300 К. Результаты расчета излучательной способности ФК, сформированного двумерной квадратной решеткой ямок, показали, что наблюдаемое в эксперименте усиление интенсивности сигнала микро-ФЛ от смачивающего слоя и Ge(Si) КТ связано с взаимодействием излучения активной среды с модами ФК.

Финансирование работы

Работа финансировалась из средств гранта РФФИ № 21-72-20184.

Благодарности

Авторы выражают благодарность В.А. Армбристеру за рост Ge/Si-структур методом молекулярно-лучевой эпитаксии, ЦКП „ВТАН“ НГУ и ЦКП „Наноструктуры“ ИФП СО РАН за предоставление измерительного оборудования. Люминесцентные исследования выполнены с использованием оборудования ЦКП ИФМ РАН „Физика и технология микро- и наноструктур“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] K.J. Vahala. *Nature*, **424**, 839 (2003).
- [2] B. Zhang, W. Wei, J. Wang, H. Wang, Zh. Zhao, L. Liu, H. Cong, Q. Feng, H. Liu, T. Wang, J. Zhang. *AIP Advances*, **9**, 015331 (2019).
- [3] M. Schatzl, F. Hackl, M. Glaser, P. Rauter, M. Brehm, L. Spindlberger, A. Simbula, M. Galli, T. Fromherz, F. Schäffler. *ACS Photonics*, **4**, 665 (2017).
- [4] K. Hirose, Y. Liang, Y. Kurosaka, A. Watanabe, T. Sugiyama, S. Noda. *Nature Photonics*, **8**, 406 (2014).
- [5] J. Zhang, M. Brehm, M. Grydlik, O.G. Schmidt. *Chem. Soc. Rev.*, **44**, 26 (2015).
- [6] Zh. Zhong, A. Halilovic, M. Mühlberger, F. Schäffler, G. Bauer. *App. Phys. Lett.*, **87**, 6258 (2003).
- [7] M. Grydlik, M. Brehm, T. Tayagaki, G. Langer, O.G. Schmidt, F. Schäffler. *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 251904 (2015).
- [8] S. Kiravittaya, A. Rastelli, O.G. Schmidt. *Rep. Progr. Phys.*, **72**, 046502 (2009).
- [9] S. Das, K. Das, R.K. Singha, S. Manna, A. Dhar, S.K. Ray, A.K. Raychaudhuri. *Nanoscale Res. Lett.*, **6**, 416 (2011).
- [10] R. Jannesari, M. Schatzl, F. Hackl, M. Glaser, K. Hingerl, T. Fromherz, F. Schäffler. *Opt. Express*, **21**, 25426 (2014).
- [11] Ж.В. Смагина, А.В. Новиков, М.В. Степихова, В.А. Зиновьев, Е.Е. Родякина, А.В. Ненашев, С.М. Сергеев, А.В. Перетокин, П.А. Кучинская, М.В. Шалеев, С.А. Гусев, А.В. Двуреченский. *ФТП*, **54**, 708 (2020).
- [12] C. Zeng, Y. Ma, Y. Zhang, D. Li, Z. Huang, Y. Wang, Q. Huang, J. Li, Z. Zhong, J. Yu, Z. Jiang, J. Xia. *Opt. Express*, **23** (17), 22250 (2015).
- [13] Z. Liu, Y. Xu, Y. Lin, J. Xiang, T. Feng, Q. Cao, J. Li, S. Lan, J. Liu. *Phys. Rev. Lett.*, **123**, 253901 (2019).
- [14] S.A. Dyakov, M.V. Stepikhova, A.A. Bogdanov, A.V. Novikov, D.V. Yurasov, M.V. Shaleev, Z.F. Krasilnik, S.G. Tikhodeev, N.A. Gippius. *Laser Photon. Rev.*, **15** (7), 2000242 (2021).
- [15] N. Hauke, S. Lichtmannecker, T. Zabel, F.P. Laussy, A. Laucht, M. Kaniber, D. Bougeard, G. Abstreiter, J.J. Finley, Y. Arakawa. *Phys. Rev. B*, **84**, 085320 (2011).
- [16] Ж.В. Смагина, В.А. Зиновьев, Е.Е. Родякина, Б.И. Фомин, М.В. Степихова, А.Н. Яблонский, С.А. Гусев, А.В. Новиков, А.В. Двуреченский. *ФТП*, **53**, 1366 (2019).
- [17] A.V. Novikov, Zh.V. Smagina, M.V. Stepikhova, V.A. Zinovyev, S.A. Rudin, S.A. Dyakov, E.E. Rodyakina, A.V. Nenashev, S.M. Sergeev, A.V. Peretokin, A.V. Dvurechenskii. *Nanomaterials*, **11**, 909 (2021).
- [18] M. Brehm, M. Grydlik. *Nanotechnology*, **28**, 392001 (2017).
- [19] C. Dais, G. Mussler, H. Sigg, T. Fromherz, V. Auzelyte, H.H. Solak, D. Grützmacher. *Europhys. Lett.*, **84**, 67017 (2008).
- [20] С.А. Рудин, Ж.В. Смагина, В.А. Зиновьев, П.Л. Новиков, А.В. Ненашев, Е.Е. Родякина, А.В. Двуреченский. *ФТП*, **52**, 1346 (2018).
- [21] Ж.В. Смагина, В.А. Зиновьев, Г.К. Кривякин, Е.Е. Родякина, П.А. Кучинская, Б.И. Фомин, А.Н. Яблонский, М.В. Степихова, А.В. Новиков, А.В. Двуреченский. *ФТП*, **52**, 1028 (2018).
- [22] Zh.V. Smagina, V.A. Zinovyev, S.A. Rudin, P.L. Novikov, E.E. Rodyakina, A.V. Dvurechenskii. *J. Appl. Phys.*, **123**, 165302 (2018).
- [23] S.G. Tikhodeev, A.L. Yablonskii, E.A. Muljarov, N.A. Gippius, T. Ishihara. *Phys. Rev. B*, **66**, 045102 (2002).

Редактор Г.А. Оганесян

Dependence of luminescence properties of ordered groups of Ge(Si) nanoislands on parameters of pit-patterned surface of silicon on insulator substrate

Zh.V. Smagina¹, V.A. Zinovyev¹, M.V. Stepikhova²,
A.V. Peretokin^{2,3}, S.A. Dyakov⁴, E.E. Rodyakina^{1,5},
A.V. Novikov^{2,3}, A.V. Dvurechenskij^{1,5}

¹ Rzhanov Institute of Semiconductor Physics,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

² Institute for Physics of Microstructures
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

³ Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

⁴ Center for Photonics and Quantum Materials,
Skolkovo Institute of Science and Technology,
143026 Moscow, Russia

⁵ Novosibirsk State University,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract This paper presents the results of studies of the luminescence properties of structures with Ge(Si) quantum dots, in which a pit-patterned surface of silicon on insulator substrate served both for the spatial ordering of quantum dots and for the formation of a two-dimensional photonic crystal. It is shown that by choosing the parameters of pit-patterned substrate (the diameter of the pits and the period of their location), it is possible to provide a significant increase of intensity of the quantum dot luminescence signal in the near infrared range. This enhancement is associated with interaction of spatially ordered quantum dot emission with the modes of a photonic crystal formed by the pattern of pits. The effect of increase of the luminescence signal persists up to room temperature.