

Электронный парамагнитный резонанс в структурах с кольцевыми молекулами GeSi квантовых точек

А. Ф. Зиновьева^{+*1)}, В. А. Зиновьев⁺, А. В. Ненашев^{+*}, А. А. Шкляев^{+*}, Л. В. Кулик^{*×}, А. В. Двуреченский^{+*}

⁺Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

^{*}Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

[×]Институт химической кинетики и горения Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 24 ноября 2020 г.

После переработки 24 ноября 2020 г.

Принята к публикации 24 ноября 2020 г.

Методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) исследованы структуры с кольцевыми группами GeSi квантовых точек, выращенных на подложках Si(001) со встроенными под поверхность GeSi нанодисками. Продемонстрирована возможность локализации электронов в кольцевых группах на вершинах квантовых точек. Получено сужение ЭПР-линии для кольцевых электронных состояний, локализованных на нанодисках. Ширина ЭПР-линии уменьшается при отклонении магнитного поля от направления роста структуры, что является экспериментальным подтверждением предсказанного ранее эффекта возрастания времени спиновой релаксации T_2 .

DOI: 10.31857/S1234567821010080

Структуры с GeSi квантовыми точками (КТ) являются одним из перспективных кандидатов на роль основы для создания базовых элементов квантового компьютера. Недавно были опубликованы работы [1, 2], где рассматриваются электронные состояния, локализованные на парах КТ, выращенные на структурированных подложках со встроенными под поверхность GeSi нанодисками. Показано, что различная пространственная локализация электронов вблизи КТ может привести к различным значениям g -факторов и возможности осуществления адресации кубитов. В данной работе рассмотрен альтернативный вариант реализации базового элемента для квантовых вычислений: кольцевые молекулы из КТ, выращенные на структурированных подложках с нанодисками. Методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) исследованы локализация и спиновая релаксация электронов в структурах с кольцевыми молекулами. Идея подхода к формированию упорядоченных кольцевых групп состоит в использовании деформации поверхностного слоя над затравками, представляющими собой напряженные GeSi нанодиски, для управления пространственным расположением растущих КТ [3]. Для усиления деформационного поля используется многослойная структура из нескольких слоев вертикально-совмещенных GeSi нанодисков. В зависимости от расстояния меж-

ду затравочной структурой и упорядоченной группой, число, размер и взаимное расположение КТ в группе может меняться [4, 5]. В данной работе были исследованы кольцевые группы, состоящие из 4-х КТ.

Структуры создавались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках Si(001). На первом этапе выращивались слои затравочных GeSi нанодисков, разделенных прослойками кремния толщиной 20 нм. Рост проводился при достаточно высоких температурах (700 °C), чтобы способствовать упорядочению затравок по размеру и по взаимному расположению. Для формирования одного слоя затравочных нанодисков осаждалось 7.5 монослоев (МС) германия. Согласно данным просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), нанодиски имели размеры основания 200–250 нм и высоту 8–10 нм [6]. На следующем этапе при более низкой температуре (600 °C) поверх нанодисков создавались группы упорядоченных КТ. Согласно данным исследований сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) осаждение 4.5 МС германия приводит к формированию кольцевых молекул (рис. 1b), представляющих собой группы из 4-х КТ, образующих правильный квадрат со сторонами вдоль кристаллографических направлений типа [100]. КТ в упорядоченных группах имеют форму *hut*-кластеров (ширина их основания: 40–50 нм, длина: 100–130 нм, высота: 4–5 нм). Были созданы структуры с различным числом слоев молекул

¹⁾e-mail: aigul@isp.nsc.ru

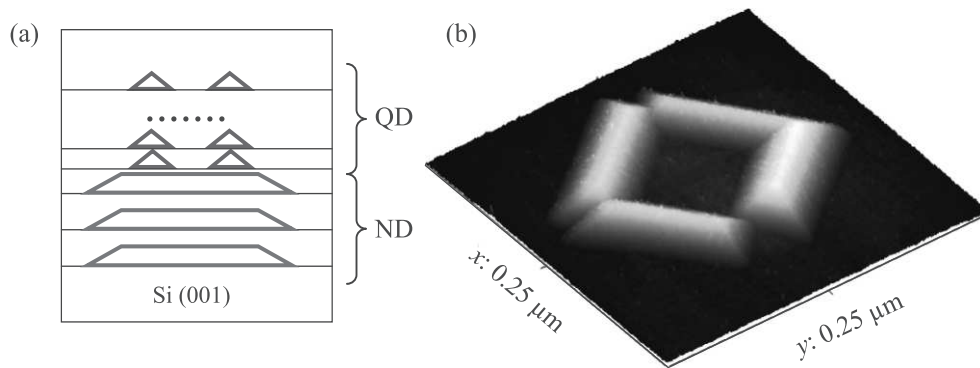


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематическое изображение исследуемых структур. Символами ND и QD обозначены слои нанодисков и КТ соответственно. (б) – СТМ-изображение открытой структуры с упорядоченной группой КТ, сформированной на затравочной структуре с тремя нанодисками

КТ (от одного до десяти), и с различным числом слоев нанодисков в затравочной структуре (от одного до трех) (рис. 1а). Увеличение числа слоев КТ приводит к росту энергии связи электронов за счет аккумуляции деформаций, причем увеличение энергии связи для электронов в молекулах возможно как за счет увеличения числа слоев самих молекул, так и за счет увеличения числа слоев нанодисков в затравочной структуре. Толщина прослоек кремния между слоями упорядоченных групп КТ составляла 10 нм, причем их рост проводился в два этапа. На первом этапе осаждался слой кремния толщиной 5 нм при более низкой температуре 400 °С (чтобы предотвратить диффузионное размытие КТ при закрытии), а на втором этапе осаждение проводилось при температуре 500 °С. Сверху структура была закрыта слоем кремния толщиной 200 нм, легированным сурьмой, концентрация примеси составляла $\sim 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Так же были исследованы тестовые структуры без кольцевых групп КТ, содержащие только 3 слоя затравочных нанодисков.

При разработке структур и интерпретации экспериментальных результатов были использованы расчеты энергетического спектра и волновых функций электронов в модельных структурах с КТ и нанодисками с помощью программы Nextnano³ [7]. Параметры КТ (состав и размеры) выбирались на основе экспериментальных данных, полученных методами EXAFS и СТМ. Согласно данным EXAFS среднее содержание Ge в затравочных нанодисках составляет $38 \pm 5 \%$, тогда как в упорядоченных КТ $47 \pm 5 \%$. Согласно расчетам, в исследуемых структурах наибольшую энергию связи имеют электроны в Δ_z -долине, локализованные на вершинах КТ в кольцевых группах (их энергия связи может достигать 130 мэВ в структуре с 10-ю слоями кольцевых групп КТ). Сле-

дующим, по энергии идут электронные состояния на краю нанодиска, в $\Delta_{x,y}$ -долинах. В структуре с тремя слоями нанодисков их энергия составляет около 40 мэВ. Электронные состояния в $\Delta_{x,y}$ -долинах, на краю КТ в кольцевых группах, не локализируются из-за неблагоприятного распределения деформации на поверхности нанодиска, энергетические уровни этих состояний расположены на 20 мэВ выше по шкале энергий, чем уровни электронов на краю нанодиска. При увеличении числа слоев нанодисков и кольцевых групп в структурах энергии связи увеличиваются. Энергия электронов в Si прослойках между дисками существенно увеличивается при подсветке за счет кулоновского взаимодействия с фотодырками, захваченными в GeSi нанодиски. Согласно оценкам добавление каждой фотодырки увеличивает энергию связи приблизительно на 10 мэВ (энергия кулоновского взаимодействия электрона и дырки на расстоянии ≈ 10 нм). Поэтому при достаточно большом уровне фотовозбуждения энергия связи может увеличиться на десятки мэВ.

Исследования методом ЭПР проводились на стандартном спектрометре фирмы Bruker ELEXSYS-580, при частоте, близкой к 9.7 ГГц, при температуре 4.5 К. Образцы представляли собой прямоугольные пластинки кремния с ориентацией поверхности (001) размером $4 \times 10 \text{ мм}^2$, вырезанные вдоль кристаллографических направлений [110] и $[\bar{1}\bar{1}0]$. Образцы крепились на длинный кварцевый стержень, который затем погружался в гелиевый криостат (Oxford CF935).

Абсолютная точность определения g -факторов была ± 0.0001 . Относительная точность определения g -факторов была увеличена примерно на порядок за счет использования эталонов. Все значения g -фактора были откалиброваны относительно значе-

ния g -фактора электронов проводимости в LiF [8]. Кроме того, мы использовали сильнолегированный образец кремния с концентрацией $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ как дополнительный g -калибратор [9].

Все исследуемые структуры с упорядоченными группами КТ продемонстрировали двойной ЭПР-сигнал без подсветки (рис. 2). При подсветке вели-

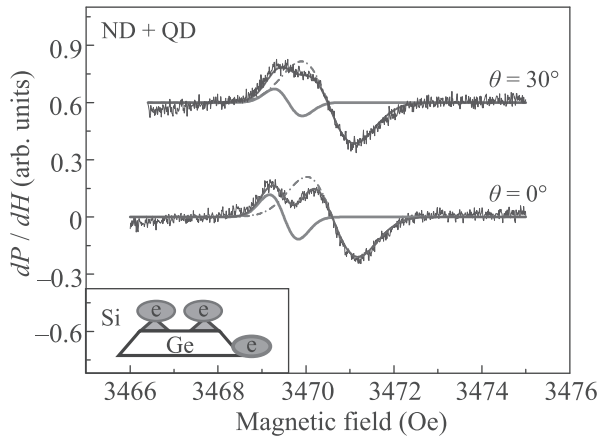


Рис. 2. (Цветной онлайн) ЭПР-спектры, полученные от структуры с одним слоем кольцевых групп КТ, выращенных на затравочной структуре с одним слоем нанодисков. Показано разложение экспериментальной кривой на две линии гауссовой формы, соответствующие электронам на вершинах КТ (красная линия) и электронам на краях нанодисков (зеленая линия). Для всех кривых мощность СВЧ излучения $P = 0.063 \text{ мВт}$, $T = 4.5 \text{ К}$, амплитуда модуляции магнитного поля 0.5 Гс . θ – угол между направлением магнитного поля и направлением роста структуры, осью Z . На вставке показана схема локализации электронов, цвет электронных облаков соответствует цвету ЭПР-линий

чина сигнала увеличивалась в несколько раз, при этом смещения или уширения сигнала не наблюдались. При отклонении магнитного поля от оси роста образца (ось Z в дальнейшем) оба сигнала сдвигаются навстречу друг другу, демонстрируя поведение, характерное для электронов из разных Δ -долин [10]. Первый сигнал с g -фактором $g_{zz} = 1.9995$ и шириной линии $\Delta H = 0.3 \text{ Гс}$ (здесь и далее ΔH – полуширина на полувысоте) может быть отнесен к электронам в Δ_z -долине, локализованным на вершинах КТ, входящих в состав кольцевых групп. Второго сигнала с g -фактором $g_{zz} = 1.9989$ и шириной линии $\Delta H = 0.6 \text{ Гс}$ может быть отнесен к электронам в $\Delta_{x,y}$ -долинах, локализованных на краю затравочных дисков. При углах отклонения, больших $\theta = 30^\circ$, сигналы сливаются практически в один. Самый большой по интенсивности сигнал наблюдается в структуре с десятью слоями молекул, вы-

ращенными на трехслойной затравочной структуре (3ND + 10QD). При подсветке многослойных образцов, выращенных на затравочной структуре с тремя нанодисками, в спектрах ЭПР появляется дополнительный узкий сигнал с $g_{zz} = 1.9998$ и шириной ЭПР-линии $\Delta H \approx 0.15 \text{ Гс}$ (в магнитном поле $\mathbf{H}_0 \parallel \mathbf{Z}$) (рис. 3). Ориентационная зависимость этого сигнала

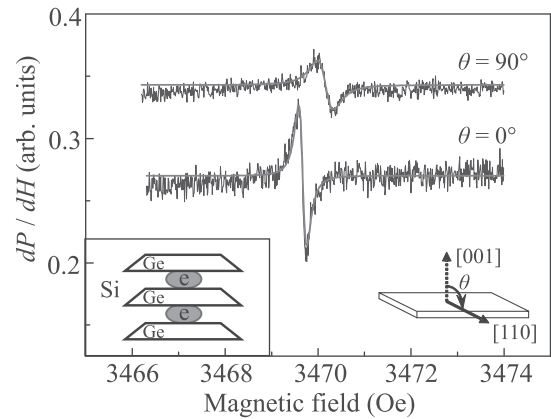


Рис. 3. (Цветной онлайн) ЭПР-спектры, полученные от структуры с одним слоем кольцевых групп КТ, выращенных на затравочной структуре с тремя слоями нанодисков, при подсветке. Для всех кривых мощность СВЧ излучения $P = 0.063 \text{ мВт}$, $T = 4.5 \text{ К}$, амплитуда модуляции магнитного поля 0.1 Гс . При такой малой амплитуде модуляции ЭПР сигналы, присутствующие в спектрах на рис. 2, не проявляются. θ – угол между направлением магнитного поля и направлением роста структуры, осью Z , как показано на вставке справа. На вставке слева показаны соответствующие места локализации электронов

позволяет отнести его к электронам в Δ_z -долине. Однако определение их пространственной локализации вызывает затруднения, поскольку возможны два варианта, либо это возбужденные состояния в кольцевых группах, либо это электронные состояния в прослойках между дисками в затравочной структуре. Эксперимент с подсветкой на однослойной структуре (1ND + 1QD) позволяет решить эту задачу. В этом случае узкий ЭПР-сигнал в спектрах не проявляется, в отличие от структур, выращенных на затравочной структуре с тремя слоями нанодисков (в тестовых структурах он также наблюдается). Это позволяет связать данный сигнал с электронами, локализованными в прослойках между дисками в затравочной структуре. Здесь глубина потенциальной ямы для электронов усиливается за счет кулоновского взаимодействия с фотодырками, что и приводит к появлению дополнительного ЭПР-сигнала. Потенциальная яма в прослойке между дисками достаточ-

но широкая в x -, y -направлениях (~ 100 – 200 нм), что позволяет считать эти электроны квазидвумерными. Данное предположение подтверждается ориентационной зависимостью ширины линии данного ЭПР-сигнала. При повороте образца в магнитном поле линия уширяется в два раза, $\Delta H \approx 0.3$ Гс в магнитном поле $\mathbf{H}_0 \perp \mathbf{Z}$ (рис. 3). Последнее обычно является проявлением механизма Дьяконова–Переля [11], свойственного для спиновой релаксации электронов в двумерной асимметричной яме [12], или в двумерном массиве туннельно-связанных КТ [13]. Следует отметить, что ширина ЭПР-линии темновых сигналов не зависит от ориентации образца в магнитном поле. Последний результат оказался неожиданным, поскольку для кольцевых групп КТ точек ожидалось сужение ЭПР-линии при отклонении магнитного поля от оси роста структуры. Такие ожидания были основаны на теоретических результатах, полученных недавно для прыжкового транспорта по кольцевым цепочкам КТ [14], которые показали увеличение времени поперечной спиновой релаксации T_2 при отклонении магнитного поля от оси Z . Время T_2 определяет ширину ЭПР-линии ($\Delta H \sim 1/T_2$), если вклад неоднородного уширения за счет разброса параметров КТ незначителен. В нашем случае ширина ЭПР-линии достаточно мала ($\Delta H \approx 0.3$ Гс), и можно ожидать проявления эффекта сужения линии. Такое сужение ЭПР-линии наблюдалось недавно для линейных цепочек GeSi КТ [15]. Существенным условием для наблюдения эффекта является наличие прыжкового транспорта в цепочке. Отсутствие эффекта сужения свидетельствует о том, что состояния электронов в упорядоченных группах КТ сильно локализованы, и туннельные переходы в группе подавлены. Однако эффект сужения ЭПР-линии был обнаружен на электронных состояниях в тестовой структуре без кольцевых групп КТ (рис. 4), включающей в себя три слоя затравочных нанодисков. Дело в том, что согласно расчетам в этом случае основное электронное состояние в Δ_z -долине имеет кольцевую волновую функцию [16], распространенную вдоль всего верхнего края нанодиска. В экспериментальных структурах, скорее всего, вместо непрерывного состояния вдоль края диска располагается цепочка туннельно-связанных состояний, между которыми и туннелирует электрон. Именно для такой цепочки и наблюдается сужение ЭПР-линии при отклонении магнитного поля от оси роста структуры. В магнитном поле, направленном вдоль оси роста структуры, ширина ЭПР-линии от электронов на верхнем крае нанодисков (красная линия на рис. 4, $g_{zz} = 1.9991$) составляет $\Delta H \approx 0.7$ Гс, а при отклоне-

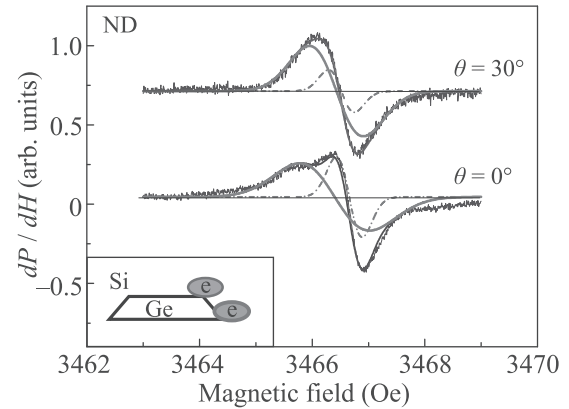


Рис. 4. (Цветной онлайн) ЭПР-спектры, полученные от тестовой структуры с 3 слоями затравочных нанодисков (без кольцевых групп КТ). Показано разложение экспериментальной кривой на две линии гауссовой формы, соответствующие электронам на верхнем крае нанодиска (красная линия) и электронам на нижнем крае нанодисков (зеленая линия). Для всех кривых мощность СВЧ излучения $P = 0.063$ мВт, $T = 4.5$ К, амплитуда модуляции магнитного поля 0.5 Гс. θ – угол между направлением магнитного поля и направлением роста структуры, осью Z . На вставке показана схема локализации электронов, цвет электронных облаков соответствует цвету ЭПР-линий

нии магнитного поля от оси Z на угол $\theta = 30^\circ$ ширина ЭПР-линии уменьшается до $\Delta H \approx 0.5$ Гс. Величина эффекта сравнима с результатом, полученным в работе [15] для линейных цепочек КТ, и может быть объяснена в терминах взаимодействия с эффективным магнитным полем, пропорциональным комбинации $\sim [\mathbf{H}_0 \times \delta\mathbf{H}]/\delta H$, где \mathbf{H}_0 – внешнее магнитное поле, а $\delta\mathbf{H}$ – аналог поля Рашбы для систем с туннельно-связанными КТ [14]. Для электронов на нижнем крае нанодисков (в $\Delta_{x,y}$ -долинах) локализуемый потенциал представлен четырьмя потенциальными ямами, расположенными вдоль направлений $[100]$, $[\bar{1}00]$, $[010]$, $[0\bar{1}0]$, разделенными барьерами толщиной ~ 100 нм [16]. Такое расположение потенциальных ям исключает туннельные переходы, что приводит к неизменности ширины ЭПР-линии при повороте образца в магнитном поле для электронов в $\Delta_{x,y}$ -долинах (зеленая линия на рис. 4).

Таким образом, в данной работе продемонстрирована возможность локализации электронов в кольцевых группах, на вершинах КТ. Однако в отличие от предыдущих исследований структур с парами туннельно-связанных КТ, все электроны, локализованные на КТ в кольцевых группах, имеют один и то же g -фактор, что может не позволить использовать для адресации кубитов различие g -факторов.

В дальнейшем этот недостаток можно компенсировать применением близко расположенных микромагнитов [17], создающих градиент магнитного поля. Получено сужение ЭПР-линии для кольцевых электронных состояний, локализованных на нанодисках, что является экспериментальным подтверждением предсказанного ранее эффекта возрастания времени спиновой релаксации T_2 .

Работа поддержана грантом Министерства науки и высшего образования # 075-15-2020-797 (13.1902.21.0024).

1. A. F. Zinovieva, V. A. Zinovyev, A. V. Nenashev, L. V. Kulik, and A. V. Dvurechenskii, *Phys. Rev. B* **99**, 115314 (2019).
2. A. F. Zinovieva, V. A. Zinovyev, A. V. Nenashev, S. A. Teys, A. V. Dvurechenskii, O. M. Borodavchenko, V. D. Zhivulko, and A. V. Mudryi, *Sci. Rep.* **10**(1), 9308 (2020).
3. V. A. Zinovyev, A. V. Dvurechenskii, P. A. Kuchinskaya, and V. A. Armbrister, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 265501 (2013).
4. M. De Seta, G. Capellini and F. Evangelisti, *Phys. Rev. B* **71**, 115308 (2005).
5. R. Marchetti, F. Montalenti, L. Miglio, G. Capellini, M. De Seta, and F. Evangelisti, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 261919 (2005).
6. V. A. Zinovyev, A. F. Zinovieva, P. A. Kuchinskaya, Zh. V. Smagina, V. A. Armbrister, A. V. Dvurechenskii, O. M. Borodavchenko, V. D. Zhivulko, and A. V. Mudryi, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 102101 (2017).
7. <http://www.nextnano.de/nextnano3/>.
8. A. Stesmans and G. van Gorp, *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 2949 (1989).
9. G. Feher, *Phys. Rev.* **114**, 1219 (1959).
10. A. F. Zinovieva, A. I. Nikiforov, V. A. Timofeev, A. V. Nenashev, A. V. Dvurechenskii, and L. V. Kulik, *Phys. Rev. B* **88**, 235308 (2013).
11. M. I. Dyakonov and V. I. Perel, *Sov. Phys. Solid State* **13**, 3023 (1972).
12. Z. Wilamowski, W. Jantsch, H. Malissa, and U. Rössler, *Phys. Rev. B* **66**, 195315 (2002).
13. A. F. Zinovieva, A. V. Dvurechenskii, N. P. Stepina, A. S. Deryabin, A. I. Nikiforov, R. M. Rubinger, N. A. Sobolev, J. P. Leitão, and M. C. Carmo, *Phys. Rev. B* **77**, 115319 (2008).
14. A. F. Zinovieva, A. V. Nenashev, and A. V. Dvurechenskii, *Phys. Rev. B* **93**, 155305 (2016).
15. A. F. Zinovieva, Z. V. Smagina, A. V. Nenashev, L. V. Kulik, and A. V. Dvurechenskii, *JETP Lett.* **102**, 108 (2015).
16. A. F. Zinovieva, V. A. Zinovyev, A. V. Nenashev, L. V. Kulik, and A. V. Dvurechenskii, *Z. Phys. Chem.* **231**, 405 (2017).
17. J. Yoneda, T. Otsuka, T. Takakura, M. Pioro-Ladriere, R. Brunner, H. Lu, T. Nakajima, T. Obata, A. Noiri, C. J. Palmstrom, A. C. Gossard, and S. Tarucha, *Appl. Phys. Express* **8**, 084401 (2015).