

УДК 538.971:544.171.6:539.23

**МИКРОСТРУКТУРА МНОГОСЛОЙНЫХ ГЕТЕРОСИСТЕМ,
СОДЕРЖАЩИХ МОЛЕКУЛЫ ИЗ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК Ge В Si,
НА ЭТАПАХ ИХ ЗАРОЖДЕНИЯ И РОСТА ПО EXAFS СПЕКТРАМ****С.Б. Эренбург^{1,2}, С.В. Трубина¹, В.В. Зверева¹, В.А. Зиновьев³, А.В. Двуреченский³,
П.А. Кучинская³, К.А. Квашнина^{4,5}**¹*Институт неорганической химии им. А.В. Николаева СО РАН, Новосибирск, Россия*
E-mail: simon@niic.nsc.ru²*Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия*³*Институт физики полупроводников СО РАН, Новосибирск, Россия*⁴*ESRF, 38043 Grenoble, France*⁵*HZDR, Institute of Resource Ecology, 01314, Dresden, Germany**Статья поступила 5 мая 2016 г.*

Проведены измерения спектров GeK EXAFS (Extended X-Ray Absorption Fine Structure) для многослойных полупроводниковых гетеросистем SiGe, содержащих группы взаимодействующих квантовых точек ("молекулы из квантовых точек"), упорядоченных в кольца, на различных этапах их роста в зависимости от их топологических параметров и условий роста. В соответствии с результатами, полученными нами ранее для квантовых точек SiGe, для молекул из квантовых точек установлено, что деформация на границах раздела приводит к уменьшению межатомных расстояний Ge—Ge на ~0,03 Å. Исследовано влияние топологии гетеросистем и температуры на различных этапах их роста на межслоевую диффузию. Установлено, что на первом этапе роста (рост "затравочных островков", служащих основой для получения молекул) при температуре 700 °С концентрация атомов Ge в системе составляет ~38 %, а при дальнейшем росте слоев вертикально-совмещенных групп квантовых точек концентрация в них германия увеличивается до ~43—47 % в зависимости от условий роста. Проведен сравнительный анализ различных методик измерений EXAFS спектров для достоверного определения структурных параметров гетеросистем SiGe различной толщины, выращенных на Si(100) поверхности.

ОИ: 10.15372/JSC20160715

Ключевые слова: микроструктура, полупроводниковые гетеросистемы, молекулы из квантовых точек GeSi, спектры EXAFS.**ВВЕДЕНИЕ**

Метод спектроскопии протяженной тонкой структуры рентгеновского поглощения (метод EXAFS спектроскопии) — это инструмент, позволяющий получать информацию о структуре сложных систем, не имеющих дальнего порядка упорядочения, для которых возможности получения подобной информации традиционными дифракционными методами весьма и весьма ограничены. Таким образом, метод EXAFS спектроскопии становится уникальным и практически безальтернативным при исследовании особенностей локальной пространственной структуры наносистем, как правило, не имеющих или имеющих ограниченный дальний порядок упорядочения. Яркими примерами таких систем являются полупроводниковые многослойные

структуры, имеющие различные весьма перспективные применения при разработке и микроминиатюризации устройств, содержащих нанофункциональные элементы. К настоящему моменту накоплен продуктивный опыт использования метода EXAFS спектроскопии (в частности, с активным участием авторов данной работы [1—8]) для исследования структурных особенностей полупроводниковых наносистем, содержащих квантовые точки (КТ).

В последние два десятилетия полупроводниковые гетероструктуры с КТ вызывают повышенный интерес во всем мире в связи с их уникальными физическими свойствами и возможностью создания на их основе светоизлучательных приборов и фотоприемников [9—11]. Прогресс, наблюдаемый в создании наноструктур пониженной размерности, связан с использованием эффектов самоорганизации. Эффект спонтанного образования трехмерных островков при гетероэпитаксии материалов с большим рассогласованием постоянных решеток (>2 %) позволяет получать массивы КТ с высокой плотностью и высокой однородностью по размерам [12, 13]. В настоящее время группы туннельно-связанных КТ, упорядоченных в пространстве, считаются наиболее перспективными объектами для создания на их основе приборов нового поколения, работа которых будет основана на законах и принципах квантовой механики [14—16].

В данной работе приводятся результаты исследований микроструктуры многослойных полупроводниковых гетеросистем SiGe, содержащих самоорганизующиеся в процессе гетероэпитаксии упорядоченные группы КТ Ge. Разработан подход к формированию кольцевых конфигураций из близкорасположенных наноструктур Ge (квантовых точек) при эпитаксии на поверхности гетероструктуры, представляющей собой подложку Si(100) с предварительно сформированными на ней затравками в виде SiGe нанодисков.

На основе предложенного подхода выращены многослойные структуры с вертикально-совмещенными кольцевыми молекулами из КТ. Исследования проведены на различных этапах роста молекул из КТ в зависимости от их топологических параметров и условий синтеза. Подобные системы можно отнести к новым перспективным объектам для фундаментальных исследований и практического применения, поскольку они обладают рядом интересных физических свойств. Это эффект Ааронова—Бома, спиновые эффекты и многое другое [17—20]. Такие системы являются перспективными кандидатами для высокоскоростных межподзонных (ISB) оптических приборов, основанных на размерном квантовании. Недавно было показано, что самоорганизующиеся квантовые кольца можно применять для детектирования терагерцового излучения [21].

Цель работы — исследование формирования кольцевых структур SiGe методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), определение их элементного состава и микроструктуры на этапах их зарождения и роста с использованием метода EXAFS спектроскопии. Работы проведены с использованием источников синхротронного излучения Центра коллективного пользования ИЯФ СО РАН (Новосибирск) и Европейского синхротронного центра ESRF (Гренобль).

СИНТЕЗ УПОРЯДОЧЕННЫХ SiGe НАНОСТРУКТУР

Упорядоченные наноструктуры SiGe выращивали на подложках Si(100) методом молекулярно-лучевой эпитаксии в установке Riber SiVA-21 [22, 23]. Кремний и германий испаряли с помощью электронно-лучевых испарителей. Скорость осаждения составляла 0,06 для Si и 0,005 нм/с для Ge.

Морфологию ростовой поверхности контролировали с помощью атомно-силовой микроскопии АСМ [22, 23] и сканирующей туннельной микроскопии СТМ [23]. Последовательность технологических процессов, приводящих к формированию групп пространственно-упорядоченных наноструктур германия, состояла из следующих этапов (рис. 1):

- 1) формирование массива затравочных трехмерных островков SiGe путем осаждения Ge из молекулярного пучка на подложку Si(100);
- 2) изменение формы затравочных трехмерных островков SiGe путем частичного зарастания их кремнием;

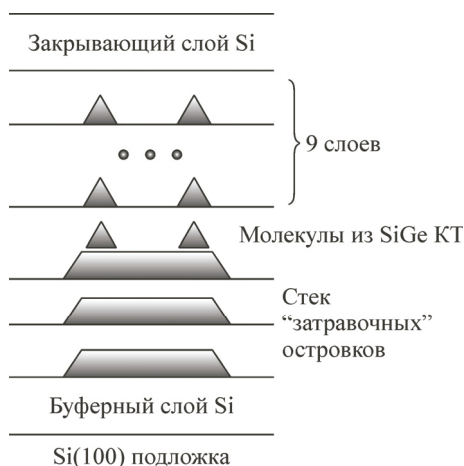


Рис. 1. Многослойная структура с кольцевыми молекулами из SiGe квантовых точек

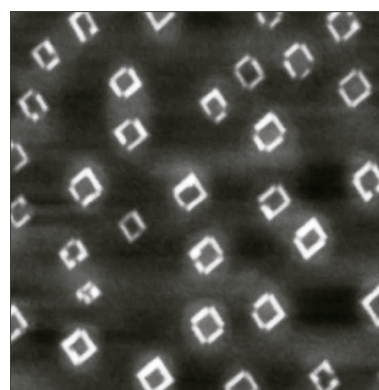


Рис. 2. АСМ-фотоснимок участка поверхности (1,5×1,5 мкм) с молекулами из квантовых точек

3) осаждение Ge поверх затравочных островков с формированием групп пространственно-упорядоченных наноструктур.

Островки, созданные на первом этапе, в дальнейшем играют роль затравок для формирования групп наноструктур Ge. Из этого вытекают требования к затравочным островкам: они должны иметь достаточно большой размер, чтобы можно было разместить на них целую группу наноструктур, и достаточно низкую плотность, чтобы группы наноструктур были хорошо отделены друг от друга. Для достижения этих целей нами использована самоорганизация в процессе роста при высоких температурах (~700 °С) и эффект уменьшения плотности массива островков при выращивании многослойных стековых структур. Вышеуказанные условия обеспечивали формирование на поверхности трехмерных затравочных SiGe островков в виде нанодисков. На рис. 2 показаны АСМ-снимки поверхности с молекулами из квантовых точек, сформированных осаждением 4,5 монослоев (МС) Ge при температуре 600 °С поверх трехслойной стековой структуры из SiGe нанодисков, выращенных при температуре 700 °С. Количество осаждаемого Ge на стадии их роста составляло 7 МС в каждом слое.

МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ EXAFS СПЕКТРОВ

Измерения GeK EXAFS спектров для гетероструктур с КТ проводили с использованием синхротронного излучения (СИ) накопителя ВЭПП-3 (Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск) и каналов ID20 и ID26 Европейского Центра СИ (ESRF, Гренобль). Падающее на образец монохроматическое синхротронное рентгеновское излучение сканируется входным двойным кристаллом-монохроматором в области края поглощения (GeK; 11103 эВ). При съемке спектров использовали флуоресцентную методику измерений рентгеновских спектров поглощения, весьма эффективную при измерениях тонких поверхностных слоев и позволяющую получать информацию о слоях глубиной от нескольких десятых микрона до нескольких монослоев. Методика основана на измерении рентгеновского излучения, генерируемого в результате распада возбужденного "дырочного" состояния атома с вакансией на внутреннем уровне, возникшей в результате поглощения рентгеновского кванта. Для увеличения отношения сигнал/шум, что необходимо при съемке EXAFS спектров супертонких слоев, измерения проводили с использованием специально изготовленных (Z-1) фильтров.

При съемке EXAFS спектров применяли несколько модификаций методики, использующей рентгеновскую флуоресценцию от образца:

1) методика с регистрацией флуоресцентного рентгеновского излучения образца в интегральном токовом режиме с использованием стандартного фотоэлектронного умножителя (рис. 3);

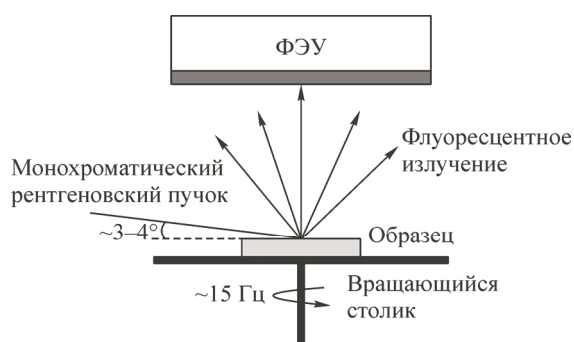


Рис. 3. Схема измерений спектров на станции EXAFS (канал 8), ВЭПП-3, ИЯФ СО РАН

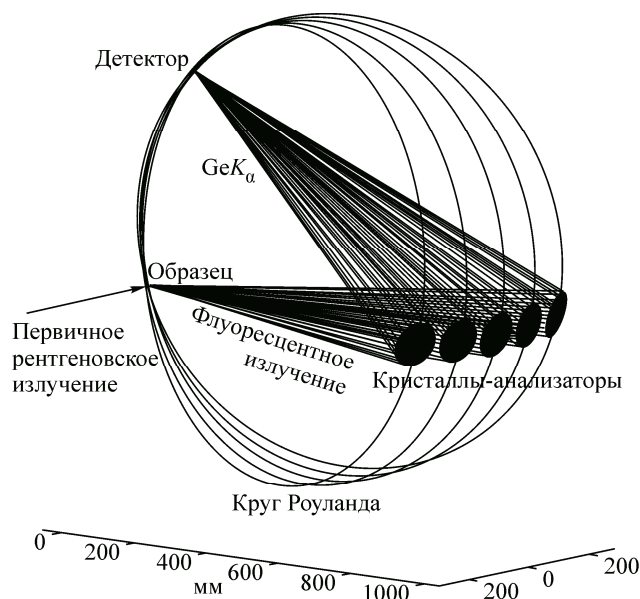


Рис. 4. Схема детектирования для HERFD XAS в области GeK края поглощения

2) HERFD (High Energy Resolution Fluorescent Detection) XAS эксперимент. Методика HERFD XAS предлагает наилучшее энергетическое разрешение и соотношение сигнал—шум при достаточной интенсивности исходного пучка СИ и совершенной конструкции регистрирующей установки (рис. 4).

В этом случае используется только один канал релаксации (линия GeK_{α} ; 9886 эВ) возбужденного рентгеновским квантом состояния, увеличивается его время жизни и, соответственно, уменьшается ширина уровня (соотношение неопределенности). Кроме того, появляется возможность регистрировать рентгеновскую интенсивность в очень узком энергетическом интервале, соответствующем GeK_{α} -линии, что очень существенно улучшает соотношение сигнал—шум и устраняет возможность появления дифракционных пиков в измерениях XAS поликристаллических образцов. Из всего флуоресцентного излучения ω , исходящего от образца, с помощью изогнутых по сфере кристаллов-анализаторов вырезается одна флуоресцентная линия, в нашем случае GeK_{α} . В результате изменение интенсивности линии флуоресценции записывается как функция от падающей энергии. Полезный сигнал (до 10^7 имп/с) практически без фоновых импульсов регистрируется с использованием лавинного фотодиода (ID26, ESRF) или двухкоординатного детектора (ID20, ESRF) в качестве приемников рентгеновского излучения. Схемы измерений на каналах ID26 и ID20 приведены на рис. 5 и 6 соответственно.

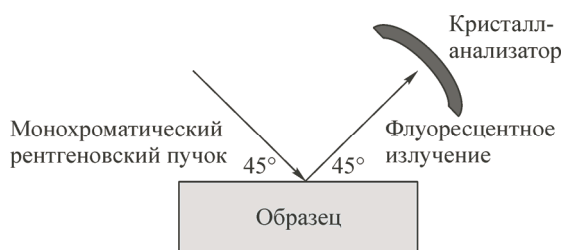


Рис. 5. Схема измерений EXAFS спектров на канале ID26, ESRF, Гренобль

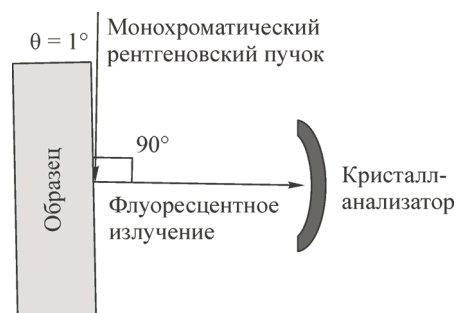
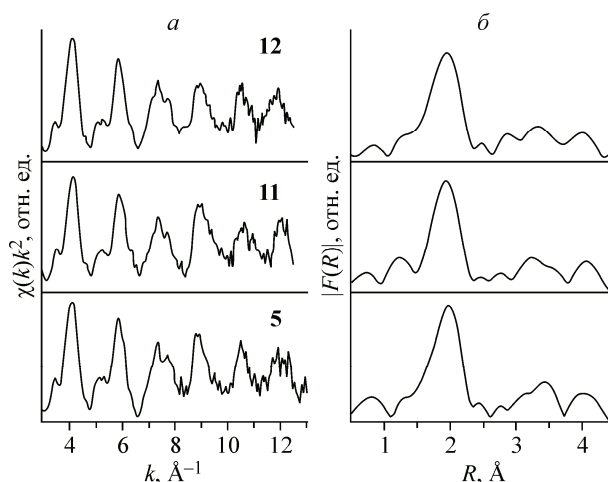


Рис. 6. Схема измерений EXAFS спектров на канале ID20, ESRF, Гренобль

Рис. 7. GeK EXAFS экспериментальные спектры для образцов 5, 11, 12 (а) и модули их Фурье-преобразования (б). Спектры получены на EXAFS станции (канал 8), ВЭПП-3, ИЯФ СО РАН



ВЭПП-3, ИЯФ СО РАН, Новосибирск.

Часть спектров EXAFS получена при комнатной температуре на станции 8 Синхротронного центра ИЯФ СО РАН. Использовали методику с регистрацией флуоресцентного рентгеновского излучения образца в интегральном токовом режиме с помощью сцинтиллятора на основе NaI, легированного таллием, и современного стандартного фотоэлектронного умножителя (см. рис. 3). Угол падения пучка на образец составлял 3—4°. В качестве кристалла-монокроматора использовали монокристалл прорезной Si(111). Для устранения влияния рефлексов дифракционного отражения монокроматического пучка СИ от подложки столик с образцом вращался с частотой ~10—15 Гц. Режим работы накопителя во время измерения: энергия 2 ГэВ, ток 50—100 мА. Пример экспериментальных спектров, полученных с помощью данной методики, приведен на рис. 7.

ID26, ESRF, Гренобль. Часть спектров EXAFS получена на станции ID26 (ESRF) при $T \sim 12$ К без вращения образцов. Угол падения пучка на образец составлял 45° (см. рис. 5), в качестве входного кристалла-монокроматора использовали Si(111), а кристаллов-анализаторов — Si(220). Полное разрешение спектрометра 1,45 эВ, размер пучка 350×90 мкм (горизонталь×вертикаль). Интенсивность первичного пучка составляла $\sim 2 \times 10^{13}$ фотон/с. Для устранения высших гармоник использовали три кремниевых зеркала с Cr/Pd покрытием. Образец, кристаллы-анализаторы и детектор (лавинный фотодиод) помещали на вертикальном круге Роуланда. Режим работы накопителя во время измерения: энергия 6 ГэВ, ток 100—200 мА. Пример экспериментальных спектров, полученных на канале ID26, приведен на рис. 8.

ID20, ESRF, Гренобль. Ряд спектров EXAFS измерены на станции ID20 (Grenoble) при $T \sim 12$ К без вращения образцов. Угол между первичным монокроматическим рентгеновским излучением и направлением на фокусирующие кристаллы 90° (см. рис. 6), угол падения рентгеновского излучения на образец 1°. Схема регистрации спектров включала: входные зеркала Si с Rh покрытием, входной кристалл-монокроматор Si(111), кристаллы-анализаторы (5 кристаллов) Si(220). Полное разрешение спектрометра 1,45 эВ, размер пучка 10×20 мкм (горизонталь×вертикаль). Образец, кристаллы-анализаторы и двухкоординатный детектор помещали на вертикальном круге Роуланда. Детектор позволял измерять одновременно 5 сканов от 5 кристаллов-анализаторов. Пример экспериментальных спектров, полученных на канале ID20, приведен на рис. 9.

Мы проверили три возможные схемы относительной ориентации падающего на образец монокроматического пучка, исследуемого образца и кристаллов-анализаторов Si(220) (ID26, ID20, ESRF). Во всех схемах

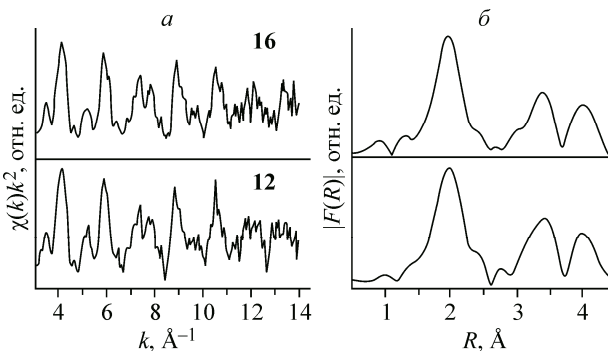


Рис. 8. GeK EXAFS экспериментальные спектры для образцов 12, 16 (а) и модули их Фурье-преобразования (б). Спектры получены на канале ID26, ESRF, Гренобль

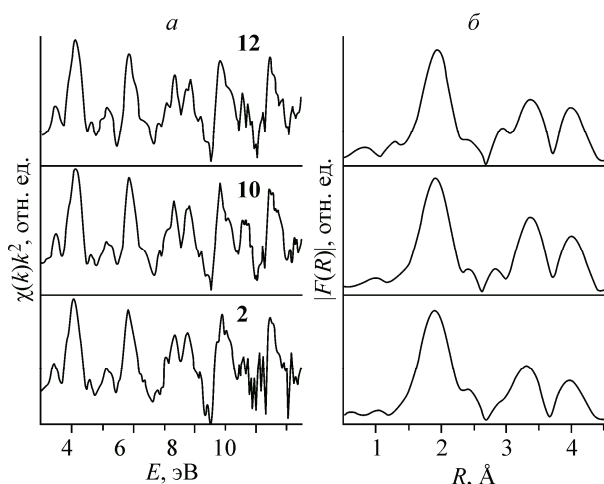


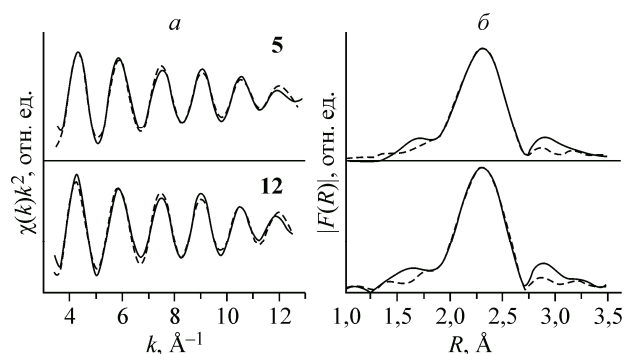
Рис. 9. GeK EXAFS экспериментальные спектры для образцов 2, 10, 12 (а) и модули их Фурье-преобразования (б). Спектры получены на канале ID20, ESRF, Гренобль

угол между направлением падающего на образец пучка и направлением на фокусирующие кристаллы 90° , а угол падения пучка на образец составлял: 1° (см. рис. 6), 45° (см. рис. 5) и 89° . Весьма эффективной оказались первая (см. рис. 6) и вторая (см. рис. 5) схемы, поскольку наши образцы соответствуют модели: "тонкие пленки и разбавленные системы". Угол падения излучения на образец, длина затухания рентгеновского излучения в Ge, количественная оценка толщины исследуемых пленок и разумные значения параметров, полученные при модельной "подгонке" спектров, подтверждают соответствие исследуемых образцов вышеуказанной модели. Что касается третьей схемы, то для нее в нашем случае не были получены достоверные результаты из-за сложности учета самопоглощения [24]. Схема с регистрацией флуоресцентного рентгеновского излучения образца в интегральном токовом режиме с использованием стандартного фотоэлектронного умножителя (см. рис. 3) также оказалась эффективной (с удовлетворительным соотношением сигнал/шум).

МЕТОДИКА ОБРАБОТКИ И МОДЕЛИРОВАНИЯ EXAFS СПЕКТРОВ

Осциллирующие части $\chi(k)$ спектров поглощения получены с использованием программы VIPER [25]. Моделирование проводили для фильтрованных в R -пространстве спектров ($\Delta R = 1,4\text{--}2,6 \text{ \AA}$) в диапазоне волновых векторов: 1) $\Delta k = 3\text{--}13 \text{ \AA}^{-1}$ для спектров, измеренных на станции EXAFS, ВЭПП-3, ИЯФ СО РАН; 2) $\Delta k = 3\text{--}14 \text{ \AA}^{-1}$ для спектров, измеренных на канале ID26, ESRF; 3) $\Delta k = 3\text{--}11 \text{ \AA}^{-1}$ для спектров, измеренных на канале ID20, ESRF, в зависимости от соотношения сигнал/шум. При проведении процедуры моделирования EXAFS для функции $\chi(k)$ использовали взвешивающий коэффициент $w = k^2$. Фактор амплитудного подавления S_0^2 , обусловленный многоэлектронными процессами, а в нашем случае также самопоглощением ("полуэмпирический параметр"), определяли в процессе моделирования спектров поглощения, полученных для образца стандарта (образец 1, пленка Ge 50 МС). Образец стандарта измеряли на всех каналах в одинаковых условиях с исследуемыми образцами. При моделировании стандарта фиксировали координационные числа в первой сфере окружения Ge ($N(\text{Ge}) = 4$) и затем определяли параметр S_0^2 . Определенный таким образом параметр составил $S_0^2 = 1,0$ (для спектров, измеренных на станции EXAFS, ВЭПП-3, ИЯФ СО РАН); 1,2 (для спектров, измеренных на канале ID26, ESRF, Гренобль) и 1,3 (для спектров, измеренных на канале ID20, ESRF, Гренобль). При дальнейших расчетах его значение фиксировали. Моделирование EXAFS спектров проводили с использованием программного пакета EXCURV98 9.27 [26]. При обработке данных фазовые и амплитудные характеристики рассчитывались в сферической волновой аппроксимации в приближении вон Барта/Хединг-Лунквиста с использованием процедур пакета. Микроструктурные характеристики определяли при обработке экспериментальных спектров в процедуре изменения параметров структурной модели при минимизации рассогласования между рассчитанным "модельным" и экспериментальным спектрами (далее "процедура моделирования"). В процессе моделирования факторы Дебая—Валлера для кремния и германия задавались равными ($2\sigma^2 = 2\sigma_1^2 = 2\sigma_2^2$), сумма координационных чисел для Si и Ge равна 4 ($N(\text{Si}) + N(\text{Ge}) = 4$), следуя опыту наших предыдущих исследований. Ошибка определения меж-

Рис. 10. Моделирование GeK EXAFS экспериментальных спектров для образцов **5**, **12** (сплошная линия — экспериментальный спектр, штриховая — модельный спектр) (а) и модули их Фурье-преобразования (б). Спектры получены на станции EXAFS, ИЯФ СО РАН (сверху) и на канале ID26, ESRF, Гренобль (снизу)



атомных расстояний в процедуре подгонки $\sim 0,01 \text{ \AA}$ ($\leq 0,5 \%$), координационных чисел $\sim 10 \%$, фактора Дебая—Валлера $\sim 20 \%$. Примеры моделирования экспериментальных EXAFS спектров приведены на рис. 10.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 1 приведены результаты моделирования экспериментальных спектров исследованных образцов и образца-стандарта. Анализируя данные табл. 1, можно сформулировать следующие выводы:

1. Для образцов, содержащих только **смачивающие слои** Ge (образцы **2** и **3**) при уменьшении температуры роста Ge на 100° (от 700 до 600°C) несколько менее ярко выражен процесс межслоевой диффузии и наблюдается увеличение координационного числа Ge—Ge на $0,2$ и уменьшение межатомного расстояния Ge—Ge на $0,03 \text{ \AA}$ (для массивного Ge $2,45 \text{ \AA}$). Этот результат согласуется с результатами, полученными нами ранее для гетероструктур SiGe с КТ.

2. В образцах с затравочными островками (**затравки**) с точностью наших измерений ($N \sim \pm 0,1$, $R \sim \pm 0,01$) мы не увидели изменений в структурных параметрах ни в зависимости от небольшого изменения температуры роста (образцы **4**, **5** при 700° ; образец **6** при 750°), ни в зависимости от количества германиевых слоев (образцы **4**, **6** (3 слоя Ge), образец **5** (10 слоев Ge)).

Т а б л и ц а 1

Параметры микроструктуры для систем Ge/Si последовательно на этапах роста молекул из КТ (суммарно по выращенным слоям)

Образец	Условия роста (кол-во МС в слоях Ge, температура роста, в скобках — количество повторений двух ростовых процедур)	$N(\text{Si})$	$N(\text{Ge})$	$R(\text{Si}), \text{ \AA}$	$R(\text{Ge}), \text{ \AA}$	$2\sigma^2, \text{ \AA}^2$
1	2	3	4	5	6	7
1 эталон	1) Si 100 нм, 500°C ; 2) Ge 50 МС, 400°		4		2,45	0,008
Смачивающий слой						
2	1) Ge 4,5 МС 600°C ; 2) Si 20 нм $600^\circ\text{C} \rightarrow (10)^*$; 3) Si 40 нм 500°C	2,9	1,1	2,36	2,42	0,008
3	1) Ge 4,0 МС 700°C ; 2) Si 20 нм $700^\circ\text{C} \rightarrow (10)^*$; 3) Si 40 нм 500°C	3,1	0,9	2,38	2,45	0,008
Затравка						
4	1) Ge 7,5 МС 700°C ; 2) Si 20 нм $700^\circ\text{C} \rightarrow (2)^*$; 3) Ge 7,5 МС 750°C ; 4) Si 5 нм 700°C , 5) Si 35 нм 500°C	3,1	0,9	2,37	2,42	0,008
5	1) Ge 7,5 МС 700°C ; 2) Si 20 нм $700^\circ\text{C} \rightarrow (10)^*$; 3) Si 30 нм 500°C	3,1	0,9	2,37	2,43	0,011
6	1) Ge 7,0 МС 750°C ; 2) Si 20 нм $750^\circ\text{C} \rightarrow (2)^*$; 3) Ge 7,0 МС 750°C ; 4) Si 5 нм 750°C ; 5) Si 35 нм 500°C	3,1	0,9	2,37	2,42	0,007

О к о н ч а н и е т а б л . 1

1	2	3	4	5	6	7
Затравка + 1 ряд КТ						
7	1) Ge 4,1 МС 700 °С; 2) Si 5 нм 700 °С; 3) Ge 4,3 МС 600 °С; 4) Si 40 нм 500 °С	3,0	1,0	2,36	2,42	0,006
8	1) Ge 7,5 МС 700 °С; 2) Si 20 нм 700 °С→(2)*; 3) Ge 7,5 МС 750 °С; 4) Si 5 нм 700 °С; 5) Ge 4,5 МС 600 °С; 6) Si 40 нм 500 °С	2,8	1,2	2,37	2,43	0,009
9	1) Ge 4,1 МС 750 °С; 2) Si 5 нм 750 °С; 3) Ge 4,3 МС 600 °С; 4) Si 40 нм 500 °С	3,0	1,0	2,38	2,43	0,009
10	1) Ge 4,4 МС 800 °С; 2) Si 5 нм 750 °С; 3) Ge 4,3 МС 600 °С; 4) Si 40 нм 500 °С	3,1	0,9	2,36	2,43	0,01
Затравка + 10 рядов КТ						
11	1) Ge 7,5 МС 650 °С; 2) Si 20 нм 650 °С→(2)*; 3) Ge 7,5 МС 650 °С; 4) Si 5 нм 650 °С; 5) Ge 4,0 МС 550 °С; 6) Si 7 нм 500 °С→(10)*; 7) Si 33 нм 500 °С	2,7	1,3	2,37	2,43	0,01
12	1) Ge 7,5 МС 700 °С; 2) Si 20 нм 700 °С→(2)*; 3) Ge 7,5 МС 700 °С; 4) Si 5 нм 710 °С; 5) Ge 4,0 МС 600 °С; 6) Si 10 нм 400 °С→(10)*; 7) Si 190 нм 500 °С	2,9	1,1	2,37	2,42	0,009
13, 14	1) Ge 7,5 МС 700 °С; 2) Si 20 нм 700 °С→(2)*; 3) Ge 7,5 МС 710 °С; 4) Si 5 нм 710 °С; 5) Ge 4,0 МС 600 °С; 6) Si 10 нм 500 °С→(10)*; 7) Si 30 нм 500 °С	3,0	1,0	2,38	2,43	0,01
15	1) Ge 7,5 МС 700 °С; 2) Si 20 нм 700 °С→(2)*; 3) Ge 7,5 МС 700 °С; 4) Si 5 нм 700 °С; 5) Ge 4,0 МС 600 °С 6) Si 5 нм 370 °С, 5 нм 500 °С } →10*; 7) Si 190 нм 500 °С	2,8	1,2	2,37	2,43	0,012
16	1) Ge 7,0 МС 750 °С; 2) Si 20 нм 750 °С→(2)*; 3) Ge 7,0 МС 750 °С; 4) Si 5 нм 750 °С 5 нм 500 °С; 5) Ge 4,5 МС 600 °С; 6) Si 10 нм 500 °С→(10)*; 7) Si 30 нм 500 °С	3,1	0,9	2,37	2,42	0,008
КТ без заливок						
17	1) Ge 7,0 МС 600 °С; 2) Si 20 нм 500 °С→(2)*; 3) Ge 7,0 МС 600 °С; 4) Si 40 нм 500 °С	2,4	1,6	2,37	2,43	0,01
18	1) Ge 5,9 МС 600 °С; 2) Si 10 нм 500 °С→(10)*; 3) Si 30 нм 500 °С	2,7	1,3	2,37	2,43	0,008
Образец с более низкими температурами синтеза						
19	1) Ge 9,0 МС 600 °С; 2) Si 5 нм 620 °С; 3) Ge 4,0 МС 550 °С; 4) Si 3 нм 400 °С→(15)*; 5) Ge _{0,25} Si _{0,75} 15 нм 500 °С; 6) Si 200 нм 500 °С	2,6	1,4	2,37	2,43	0,004

П р и м е ч а н и е: цифрами 1)–7) обозначена последовательность технологических операций.

* Две технологические операции повторяются последовательно.

3. Сравнивая характеристики **затравок и смачивающих слоев** для них, следует отметить, что для образца **5** среднее содержание Ge в затравочных островках, выращенных при 700 °С, практически совпадает с содержанием Ge в смачивающих слоях (образец **3**), сформированных при той же температуре.

4. Для образцов **затравки + 1 ряд точек** трудно провести последовательное сравнение, поскольку образцы имеют некоторую (в основном небольшую) разницу в технологии приготовления (по числу слоев в затравках, количеству Ge в слое, температуре роста затравок). Следует, однако, отметить, что для образца **8** координационное число Ge—Ge ($N(\text{Ge})$) увеличивается на 0,2 по сравнению с тремя другими образцами, что связано с тем, что количество Ge в затравочных островках в этом образце заметно больше, чем в других (7,5 МС по сравнению с 4 МС для других образцов этой серии).

5. В образцах **затравки + 10 рядов точек** следует обратить внимание на увеличение $N(\text{Ge})$ для образца **11** по сравнению с другими образцами этой серии, что объясняется уменьшением температуры на всех этапах роста и, соответственно, менее ярко выраженной межслоевой диффузией. Некоторое увеличение $N(\text{Ge})$ для образца **15**, по-видимому, связано с заметным уменьшением температуры роста кремниевого слоя (от 500 до 370 °С), закрывающего германиевые точки.

6. В образцах **с одиночными КТ без затравок** заметно изменение $N(\text{Ge})$ в зависимости от числа нанесенных слоев и их толщины. Для образца **18** (число слоев 10, толщина слоя 5,9 МС) по сравнению с образцом **17** (число слоев 3, толщина слоя 7 МС) — $N(\text{Ge})$ заметно (на 0,3) уменьшается.

7. Для образца **19, синтезированного при несколько более низких температурах**, координационное число $N(\text{Ge}) = 1,4$ заметно больше, чем для других образцов с той же толщиной Ge слоев.

Особый интерес представляет **определение микроструктурных характеристик не в среднем по образцу, а на всех этапах его роста**. Такая оценка проведена нами для части образцов, и ее результаты представлены в табл. 2: приведены координационные числа, межатомные расстояния и процентное содержание Ge в слоях, выращенных последовательно на этапах приготовления квантовых колец. Вышеуказанные параметры определены с учетом очевидного общего выражения для среднего координационного числа Ge в образце $N_{\text{ср}} = N_{\text{см}}A_{\text{см}} + N_{\text{затр}}A_{\text{затр}} + N_{\text{КТ}}A_{\text{КТ}}$, где $A_{\text{см}}$ — доля Ge в смачивающих слоях по отношению ко всему Ge в образце; $N_{\text{см}}$ — координационное число для Ge в смачивающем слое; $A_{\text{затр}}$ — доля Ge в затравочном слое ко всему Ge в образце; $N_{\text{затр}}$ — координационное число для Ge в затравочном слое; $A_{\text{КТ}}$ — доля Ge в КТ ко всему Ge в образце; $N_{\text{КТ}}$ — координационное число для Ge в КТ.

Таким образом, установлено, что на первом этапе роста (рост затравок) содержание Ge в образцах составляло ~38 %, при дальнейшем росте — формировании молекул из КТ соответствующие слои содержат ~43—47 % Ge. При формировании КТ без предварительного формирования затравок содержание Ge в КТ составило ~60—70 % в зависимости от толщины и количества слоев Ge.

Представляется интересным сравнить полученные нами результаты по процентному содержанию Ge в слоях последовательно на этапах роста кольцевых молекул из КТ с интегральными результатами для квантовых колец в целом, полученными другими методами [27, 28]. В обоих исследованиях температура формирования КТ составляла 600 °С, что соответствует температуре формирования наших кольцевых молекул из КТ. Количество Ge, идущего на образование КТ, варьировали от 6 до 10 МС, что больше, чем в нашем случае (4—5 МС). В работе [27] применен рентгеноструктурный анализ, тогда как в [28] использован метод просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) в режиме, чувствительном к составу твердого раствора GeSi. Согласно данным рентгеноструктурного анализа, среднее содержание Ge в КТ не превышало 51 %, тогда как по данным ПЭМ из второй работы содержание Ge в КТ составляет около 60 %. Таким образом, исходя из имеющихся литературных данных для гетероструктур Ge/Si с КТ, выращенных в близких условиях роста по температуре, среднее содержание Ge

Т а б л и ц а 2

Координационные числа, межатомные расстояния и процентное содержание Ge в каждом из слоев отдельно, выращенных на этапах приготовления затравочных нанодисков и молекул из КТ (в скобках — количество повторений ростовых процедур)

Обра- зец	Условия роста, толщины слоев, метод расчета характеристик слоя	N(Si)	N(Ge) интегр.	N(Ge) в слое.	% Ge в слое	R(Si), Å	R(Ge), Å
Смачивающий слой							
2	Ge 4,5 МС 600 °С	2,9	1,1		42	2,36	2,42
3	Ge 4,0 МС 700 °С	3,1	0,9		38	2,38	2,45
Затравка							
5	Ge 7,5 МС 700 °С, (10)	3,1	0,9	—	38	2,37	2,43
Затравка (с вычетом смачивающих слоев)							
5	Ge 7,5 МС 700 °С, (10) Вычитание смачив. слоев	3,1	0,9	0,9	38	2,37	2,43
Затравка + 1 ряд КТ (с вычетом затравок)							
7	Ge 4,3 МС 600 °С (1) Вычитание затравочн. слоя с Ge 4,1 МС 700 °С	3,0	1,0	1,15	43	2,36	2,42
Затравка + 10 рядов КТ (с вычетом затравок)							
12	Ge 4,0 МС 600 °С (10) Вычитание затравочн. слоя с Ge 7,5 МС 700 °С	2,8	1,2	1,37	47	2,37	2,42
КТ без затравок							
17	Ge 7,0 МС 600 °С, (3)	2,4	1,6	—	52	2,37	2,43
18	Ge 5,9 МС 600 °С, (10)	2,7	1,3	—	46	2,37	2,43
КТ без затравок (с вычетом смачивающих слоев)							
17	Ge 7,0 МС 600 °С (3) Вычитание смачив. слоев	2,4	1,6	2,5	70	2,37	2,43
18	Ge 5,9 МС 600 °С (10) Вычитание смачив. слоев	2,7	1,3	1,93	60	2,37	2,43

в наших кольцевых молекулах из КТ должно составлять $\leq 50\%$, поскольку процесс межслоевой диффузии в более тонких (в нашем случае) слоях Ge должен приводить к более существенному перемешиванию атомов Ge и Si, что соответствует полученным нами результатам.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 16-02-00175_а и 16-52-0016Бел_а).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Эренбург С.Б., Бауск Н.В., Ненашев А.В. и др. // Журн. структур. химии. — 2000. — **41**, № 5. — С. 890.
2. Erenburg S.B., Bausk N.V., Stepina N.P. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. — 2001. — **470**, N 1-2. — P. 283.
3. Erenburg S.B., Bausk N.V., Mazalov L.N. et al. // J. Synchrotron Rad. — 2003. — **10**, N 5. — P. 380.
4. Erenburg S., Bausk N., Nikiforov A. et al. // AIP Conf. Proc.: Physics of Semiconductors. — 2005. — **772**. — P. 585.
5. Erenburg S.B., Bausk N.V., Mazalov L.N. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. — 2005. — **543**, N 1. — P. 188.

6. Erenburg S.B., Bausk N.V., Bausk V.E. et al. // J. Phys.: Conf. Series. – 2006. – **41**. – P. 261.
7. Эренбург С.Б., Бауск Н.В., Двуреченский А.В. и др. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. – 2007. – № 1. – С. 31.
8. Эренбург С.Б., Трубина С.В., Бауск Н.В. и др. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. – 2011. – № 9. – С. 47.
9. Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Щукин В.А. и др. // Физика и техника полупроводников. – 1998. – **32**, № 4. – С. 385.
10. Yakimov A.I., Dvurechenskii A.V., Nikiforov A.I. // J. Nanoelectron. Optoelectron. – 2006. – **1**, N 2. – P. 119.
11. Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В. и др. // Физика и техника полупроводников. – 2000. – **34**, № 11. – С. 1281.
12. Stangl J., Holy V., Bauer G. // Rev. Mod. Phys. – 2004. – **76**, N 3. – P. 725.
13. Bayer M., Hawrylak P., Hinzer K. et al. // Science. – 2001. – **291**, N 5503. – P. 451.
14. Kiravittaya S., Rastelli A., Schmidt O.G. // Rep. Progr. Phys. – 2009. – **72**, N 4. – P. 046502.
15. Yakimov A.I., Bloskin A.A., Dvurechenskii A.V. // Phys. Rev. B. – 2010. – **81**, N 11. – P. 115434.
16. Tersoff J., Teichert C., Lagally M.G. // Phys. Rev. Lett. – 1996. – **76**, N 10. – P. 1675.
17. Lorke A., Luyken R.J., Govorov A.O. et al. // Phys. Rev. Lett. – 2000. – **84**, N 10. – P. 2223.
18. Kleemans N.A.J.M., Bominaar-Silkens I.M.A., Fomin V.M. et al. // Phys. Rev. Lett. – 2007. – **99**, N 14. – P. 146808.
19. Saiga Y., Hirashima D.S., Usukura J. // Phys. Rev. B. – 2007. – **75**, N 4. – P. 045343.
20. Kuroda T., Mano T., Ochiai T. et al. // Phys. Rev. B. – 2005. – **72**, N 20. – P. 205301.
21. Huang G., Guo W., Bhattacharya P. et al. // Appl. Phys. Lett. – 2009. – **94**, N 10. – P. 101115.
22. Кучинская П.А., Зиновьев В.А., Ненашев А.В. и др. // Материалы электронной техники. – 2011. – № 4. – С.42.
23. Зиновьев В.А., Двуреченский А.В., Кучинская П.А. и др. // Физика и техника полупроводников. – 2015. – **49**, № 2. – С. 155.
24. Pfalzer P., Urbach J.-P., Klemm M. et al. // Phys. Rev. B. – 1999. – **60**, N 13. – P. 9335.
25. Klementev K.V. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2001. – **34**, N 2. – P. 209.
26. Binsted N. EXCURV 98: CCLRC Daresbury Laboratory Computer Program, 1998.
27. Лобанов Д.Н., Новиков А.В., Кудрявцев К.Е. и др. // Физика и техника полупроводников. – 2009. – **43**, № 3. – С. 332.
28. Талалаев В.Г., Тонких А.А., Захаров Н.Д. и др. // Физика и техника полупроводников. – 2012. – **46**, № 11. – С. 1492.