

Исследование структуры тонкого слоя алюминия на вицинальной поверхности подложки арсенида галлия методом высокоразрешающей электронной микроскопии

М.В. Ловыгин¹, Н.И. Боргардт¹, М. Зайбт², И.П. Казаков³, А.В. Цикунов³

¹*Национальный исследовательский университет «МИЭТ»*

²*4-й Физический институт Геттингенского университета, Германия*

³*Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН (г. Москва)*

Structure of Thin Aluminum Layer Grown on Vicinal Surface of Gallium Arsenide Substrate Studied by High-Resolution Electron Microscopy

M.V. Lovygin¹, N.I. Borgardt¹, M. Seibt², I.P. Kazakov³, A.V. Tsikunov³

¹*National Research University of Electronic Technology*

²*IV. Physikalisches Institut, Universität Göttingen*

³*P.N. Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences*

Представлены результаты электронно-микроскопических исследований тонкого эпитаксиального слоя алюминия на разориентированной подложке арсенида галлия. Установлено, что слой состоит из зерен различных ориентаций, кристаллические решетки которых когерентно сопрягаются с подложкой с образованием дислокаций несоответствия, как и в случае слоя на сингулярной подложке. Визуализированы атомные ступени на поверхности подложки и обсуждено их влияние на рост кристаллических зерен алюминия.

Ключевые слова: алюминий; арсенид галлия; вицинальная поверхность; молекулярно-пучковая эпитаксия; высокоразрешающая просвечивающая электронная микроскопия.

The results of electron microscopy studies of a thin epitaxial aluminum layer on a misoriented gallium arsenide substrate are presented. It has been found that the layer consists of differently oriented domains and their crystal lattices coherently conjugate with the substrate forming misfit dislocations at the interface, as in the case of the layer grown on a singular substrate. Atomic steps on the substrate surface have been visualized and their influence on the growth of aluminum domains have been discussed.

Keywords: aluminum; gallium arsenide; vicinal surface; molecular beam epitaxy; high-resolution transmission electron microscopy

Тонкие металлические слои, выращенные на подложках полупроводниковых соединений на основе $A^{III}B^V$, являются объектом многочисленных исследований [1–3], главным образом вследствие их применения для создания выпрямляющих и омических

контактов в опто- и сверхвысокочастотной электронике. Такие системы находят применение и в новых областях, например плазмонике [4].

Система Al/GaAs(100), выращиваемая методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ), – одна из наиболее используемых и хорошо изученных, в том числе из-за возможности формирования на ее основе контактов Шоттки. Известно [5, 6], что на кристаллографически точно ориентированной (сингулярной) поверхности подложки тонкий эпитаксиальный слой Al растет по островковому механизму и состоит из кристаллических зерен трех ориентаций: Al(100), Al(110) и Al(110)R. Соотношение между этими ориентациями и размер зерен зависят от условий роста, толщины слоя, а также от атомной реконструкции поверхности подложки и наличия на ней ступеней [5, 6].

Отклонение подложки от точной кристаллографической ориентации приводит к образованию упорядоченного набора атомных ступеней и гладких террас на ее так называемой вицинальной поверхности. Такие подложки в ряде случаев позволяют улучшить качество формируемых слоев и структур [7]. В [8] высказано предположение, что при выращивании слоя Al на вицинальной поверхности GaAs(100) доля и размеры зерен Al(100) должны уменьшаться, а зерен Al(110) и Al(110)R – увеличиваться. Это подтверждено исследованиями, выполненными методом сканирующей туннельной микроскопии [9]. Для выявления закономерностей формирования слоя Al при росте на вицинальной поверхности GaAs(100) необходимы детальные исследования как структуры образующих его зерен Al, так и особенностей их сопряжения с подложкой. Такие исследования могут быть выполнены методом просвечивающей электронной микроскопии, обеспечивающей разрешение вплоть до атомарного и находящей широкое применение при изучении полупроводниковых гетероструктур [10, 11] и выращенных на их поверхности пленок [12].

В настоящей работе метод высокоразрешающей электронной микроскопии (ВРЭМ) используется для исследований тонкого эпитаксиального слоя Al, выращенного методом МПЭ на вицинальной поверхности подложки GaAs(100). Полученные изображения, их анализ и сравнение с литературными данными позволили изучить атомарную структуру образующих этот слой зерен и закономерности их сопряжения с подложкой.

Материалы и методы. Для роста исследуемой структуры использовалась подложка GaAs(100), разориентированная на 3° к плоскости (110). После процедуры десорбции окисла в установке МПЭ ЦНА-25 с твердыми молекулярными источниками выращивался буферный слой GaAs толщиной 0,5 мкм при температуре 630 °С.

Перед осаждением слоя Al для подавления образования As- или Ga-обогащенных прослоек на гетерогранице Al/GaAs состав поверхности подложки приводился к стехиометрическому. Для этого после осаждения буферного слоя GaAs подложка в потоке As охлаждалась до температуры около 300 °С, а после охлаждения источника As и нескольких импульсных отжигов поверхность приобретала реконструкцию (3×6).

Слой Al толщиной 45 нм выращивался при температуре, близкой к 100 °С, со скоростью 0,01 нм/с и при фоновом давлении As менее 10^{-7} Па.

Для исследования структуры слоя Al методом ВРЭМ изготавливалась тонкая фольга поперечного сечения в проекции GaAs(01 $\bar{1}$) с применением традиционного метода. Он включает в себя механическую шлифовку и полировку образца до толщины 30 мкм и его последующее финишное утонение пучком ионов Ag⁺ с энергией 3 кэВ при угле падения 6° в установке Gatan PIPS Model 691. Приготовленные таким образом образцы исследовались на просвечивающем электронном микроскопе Philips CM200 FEG при ускоряющем напряжении 200 кВ.

Структура слоя алюминия на вицинальной поверхности арсенида галлия. Основываясь на литературных данных [5], можно предположить, что кристаллические зерна трех ориентаций в тонком слое Al на вицинальной поверхности подложки ориен-

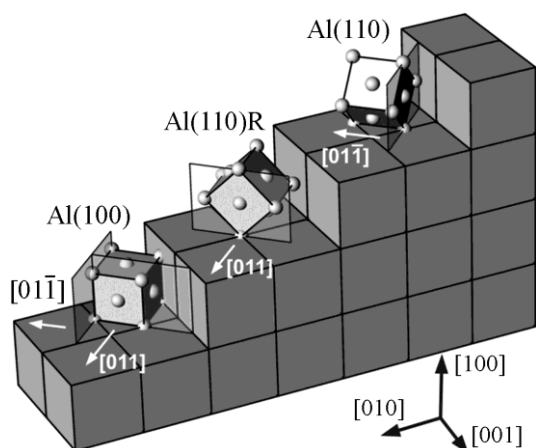


Рис.1. Схематическое изображение зерен слоя Al трех ориентаций на вициальной поверхности подложки: куб – элементарная ячейка материала; стрелки – направления в подложке

шей упорядоченные наборы ступеней на границе раздела слоя Al и GaAs, позволил однозначно установить ориентацию зерен и соответствие распространения электронного пучка направлению GaAs $[0\bar{1}\bar{1}]$. Приведенные изображения, а также изучение большого числа подобных микрофотографий свидетельствуют о кристаллическом совершенстве зерен Al в выращенном слое, хотя в ряде случаев в них обнаружены дефекты дислокационного типа.

Из рис.2,а,в видно, что плоскости типа $\{200\}$ зерен Al параллельны плоскостям (220) подложки GaAs. Однако из-за различия межплоскостных расстояний между этими наборами плоскостей, соответственно равных 2,025 и 1,999 Å, вблизи границы раздела зерен Al и подложки формируются краевые дислокации несоответствия (ДН) с вектором Бюргера $\frac{1}{4}[0\bar{1}\bar{1}]$, которые снимают напряжения несоответствия кристаллических решеток.

Для визуализации обусловленных ДН полей деформации применен метод геометрической фазы [13], реализуемый с помощью дополнения [14] к программному обеспечению для обработки и анализа изображений Digital Micrograph. Метод основан на выделении рефлексов на фурье-образе высокоразрешающего изображения при помощи круглой апертуры, выполнении обратного фурье-преобразования и анализе фазовой компоненты фильтрованного комплексного изображения. Поскольку согласно [13] эта компонента содержит информацию о локальных смещениях атомных плоскостей, то, используя данные, полученные на основе выделения двух рефлексов, можно вычислить двумерное поле деформации в образце.

Для анализа поля деформации вблизи ДН на рис.2,в выбрана пара рефлексов, отмеченных на вставке в правой части рисунка. Верхний рефлекс соответствует плоскостям GaAs(200), параллельным поверхности роста, а правый рефлекс относится к совокупности плоскостей GaAs $(0\bar{2}\bar{2})$ и Al $(00\bar{2})$, перпендикулярных границе раздела. Полученное поле деформации, показанное на рис.2,з, визуализирует величину $\varepsilon_{xx} = \partial u_x / \partial x$, где u_x – величина локального смещения атомных плоскостей вдоль оси x , совпадающей с направлением GaAs $[0\bar{1}\bar{1}]$.

тированы относительно нее, как показано на рис.1. Элементарная ячейка зерна Al(100) развернута на 45° в плоскости слоя относительно элементарной ячейки GaAs так, что направления Al $[010]$ и Al $[001]$ параллельны направлениям GaAs $[011]$ и GaAs $[0\bar{1}\bar{1}]$ соответственно. Ориентации зерен Al(110) и Al(110)R отличаются друг от друга разворотом на 90° в плоскости слоя, и для них только одно направление Al $[001]$ параллельно соответствующему направлению GaAs $\langle 011 \rangle$.

Зерна Al с перечисленными ориентациями обнаружены при исследовании образцов поперечного сечения методом ВРЭМ (рис.2,а–в). Характер узора на высокоразрешающих электронно-микроскопических изображениях зерен и подложки, содержа-

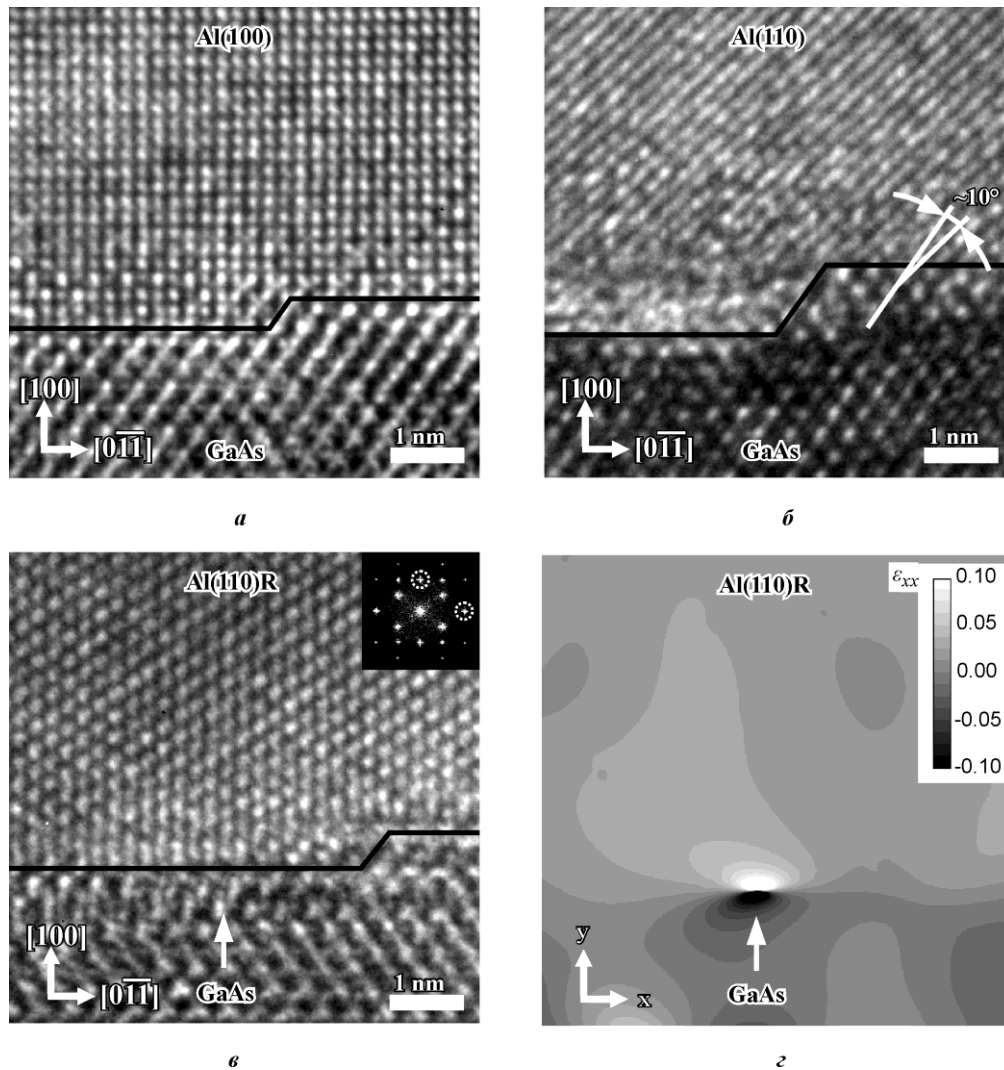


Рис.2. Высокорастворяющие изображения зерен Al(100) (а), Al(110) (б), Al(110)R (в) на вицинальной поверхности подложки GaAs(100) и визуализированная компонента поля деформации ϵ_{xx} (г). На рис.а,б,в черные линии – ступени на поверхности подложки, на вставке рис.в – фурье-образ изображения с выделенными рефлексами, использованными для вычисления поля деформации, стрелками на рис.в и г отмечено положение дислокации несоответствия

Интенсивность на изображении отражает деформацию кристаллических решеток зерна Al и подложки в соответствии со шкалой, показанной в правом верхнем углу рис.2,г. Из этого рисунка видно, что значительные деформации кристаллических решеток возникают только в отмеченной стрелкой области вблизи дислокации несоответствия. В этой области в зерне Al локальные межплоскостные расстояния между плоскостями Al(002) увеличиваются (деформация растяжения), а в подложке между плоскостями GaAs(022) – уменьшаются (деформация сжатия).

Экспериментально измеренное среднее расстояние между ДН вдоль границы раздела зерен Al и подложки составило приблизительно 15 нм, что близко к теоретическому значению 14,8 нм. Отметим, что авторы работы [6] при исследовании слоя Al, выращенного на сингулярной поверхности, нашли среднее расстояние между такими ДН, равным около 13 нм, что хорошо согласуется с результатами настоящей работы. Таким образом, можно заключить, что ступени на поверхности разориентированной подложки

не оказывают заметного влияния на дислокационную структуру границы раздела Al/GaAs.

Отметим, что кристаллографическая эквивалентность зерен Al(110)R и Al(110) дает основание полагать, что для зерен Al(110) подобные ДН должны иметь вектор Бюргерса $\frac{1}{4}[0\bar{1}1]$, перпендикулярный плоскости рис.2,б. Для плоскостей Al(200) и Al(020) зерен Al(110), которые наклонены относительно границы раздела и визуализированы на рис.2,б, наблюдается тенденция к замыканию на плоскости GaAs($1\bar{1}\bar{1}$) и GaAs(111). Таким образом, в среднем на каждую из трех плоскостей GaAs приходится четыре плоскости Al. Измеренный угол наклона между этими наборами плоскостей составил примерно 10° при теоретическом значении $9,7^\circ$.

Несмотря на то что большинство зерен слоя алюминия при их всех трех ориентациях практически идеально ориентированы относительно подложки так, как это показано на рис.1, у некоторых зерен Al(100) обнаружен разворот кристаллической решетки вокруг направления GaAs[$01\bar{1}$] в пределах угла $0,5^\circ$, а у зерен Al(110) – вплоть до угла в 1° . Такие отклонения могут быть связаны с наличием атомных ступеней или другими несовершенствами на поверхности подложки [15].

Особенностью разориентированных подложек является формирование на них атомных ступеней различной высоты, которые визуализированы на рис.2,а–в. При тщательном изучении границы раздела слоя алюминия и подложки установлено, что в основном на ней формируются ступени в один атомный слой. Среднее расстояние между моноатомными ступенями составляет около 5 нм, что соответствует расчетному значению для подложки с разориентацией на 3° к плоскости (110). Наличие ступеней оказывает влияние на рост слоя Al из-за различия межплоскостных расстояний зерен Al и подложки в направлении роста, обусловленного деформациями кристаллических решеток. Так, для зерен Al(100) эти различия составляют примерно 40%, в то время как для зерен Al(110) и Al(110)R они близки к 1,3%. Вследствие этого рост зерен Al(100) на разориентированной подложке становится энергетически менее выгодным по сравнению со случаем GaAs(100) с сингулярной поверхностью. На основе анализа большого числа микрофотографий установлено, что зерна с ориентацией Al(100) доминируют в выращенном слое и в этом случае. Это обусловлено тем, что у таких зерен в плоскости слоя хорошее сопряжение с подложкой происходит по двум направлениям – GaAs[011] и GaAs[$01\bar{1}$], а у зерен двух остальных ориентаций – только по одному из них, что делает их рост менее выгодным. Кроме того, отметим, что существенное различие в межплоскостных расстояниях по одному из упомянутых направлений приводит, по видимому, к появлению более широкой переходной области вблизи границы раздела зерен Al(110) и Al(110)R с подложкой по сравнению с зернами Al(100), как это видно из сравнения микрофотографий на рис.2,а–в.

Методами высокоразрешающей просвечивающей электронной микроскопии исследован тонкий слой Al, выращенный при помощи молекулярно-пучковой эпитаксии на разориентированной подложке GaAs(100). Используя образцы поперечного сечения, установлено, что он, как и в случае слоя, выращенного на сингулярной подложке [6], имеет островковую структуру, состоящую из зерен трех ориентаций – Al(100), Al(110), Al(110)R – с достаточно совершенной кристаллической структурой.

Расогласование межплоскостных расстояний зерен Al и GaAs в перпендикулярных к плоскости роста направлениях приводит к образованию дислокаций несоответ-

вия с вектором Бюргера $\frac{1}{4}[0\bar{1}\bar{1}]$, обнаруженных на границе раздела подложки и зерен Al(100) и Al(110)R. Среднее расстояние между ними вдоль границы раздела согласуется как с теоретическим, так и экспериментальным значением для слоя, выращенного на сингулярной подложке [6]. Это означает отсутствие существенного влияния разориентации подложки на 3° на дислокационную структуру системы Al/GaAs(100). Поле деформации кристаллических решеток вблизи дислокации несоответствия визуализировано с помощью метода геометрической фазы. Установлено, что перпендикулярные границе раздела плоскости Al(00 $\bar{2}$) и GaAs(0 $\bar{2}$ $\bar{2}$) когерентно сопрягаются между собой и все напряжение несоответствия решеток снимается образованием дислокаций несоответствия.

Хотя большинство зерен Al практически идеально ориентированы относительно подложки, у некоторых из них обнаружен небольшой разворот кристаллической решетки относительно подложки – в пределах углов $0,5^\circ$ для Al(100) и 1° для Al(110). Он может быть связан с регулярно расположенными, в основном моноатомными ступенями, которые выявлены на поверхности подложки. Несмотря на то что атомные ступени препятствуют формированию зерен Al(100) из-за большого рассогласования межплоскостных расстояний в них и в GaAs(100) в направлении роста, такая ориентация зерен остается доминирующей в выращенном слое так же, как и в случае сингулярных подложек.

Литература

1. Thermal stability of Pd/Pt/Au ohmic contacts to InAlSb/InAs heterostructures for high electron mobility transistors / **R. Dormaier, Q. Zhang, B. Liu et al.** // J. Appl. Phys. – 2009. – Vol. 105. – P. 044505-1–044505-8.
2. **Kumar A.A., Janardhanam V., Reddy V.R.** Electrical, structural and morphological characteristics of rapidly annealed Pd/n-InP(100) Schottky structure // J. Mater. Sci.: Mater. Electron. – 2011. – Vol. 22, N. 7. – P. 854–861.
3. Characterization of single-crystalline aluminum thin film on (100) GaAs substrate / **S.-W. Lin, J.-Y. Wu, S.-D. Lin et al.** // Jpn. J. Appl. Phys. – 2013. – Vol. 52. – P. 045801-1–045801-5.
4. Plasmonic nanolaser using epitaxially grown silver film / **Y.-J. Lu, J. Kim, H.-Y. Chen et al.** // Science. – 2012. – Vol. 337, N. 450. – P. 450–453.
5. **Landgren G., Ludeke R., Serrano C.** Epitaxial Al films on GaAs(001) surfaces // J. Cryst. Growth. – 1982. – Vol. 60, N. 2. – P. 393–402.
6. **Kiely C.J., Cherns D.** On the atomic structure of the Al-GaAs(100) interface // Phil. Mag. A. – 1989. – Vol. 59, N. 1. – P. 1–29.
7. **Samavedam S.B., Fitzgerald E.A.** Novel dislocation structure and surface morphology effects in relaxed Ge/SiGe(graded)/Si structures // J. Appl. Phys. – 1997. – Vol. 81. – P. 3108–3116.
8. **Petroff P.M., Feldman L.C., Cho A.Y., Williams R.S.** Properties of aluminum epitaxial growth on GaAs // J. Appl. Phys. – 1981. – Vol. 52, N. 12. – P. 7317–7320.
9. Multiorientational growth of Al on GaAs(001) studied with scanning electron microscopy / **Y.S. Luo, Y.-N. Yang, J.H. Weaver et al.** // Phys. Rev. B. – 1994. – Vol. 49, N. 3. – P. 1893–1899.
10. **Rosenauer A.** Transmission electron microscopy of semiconductor nanostructures: analysis of composition and strain state. – Berlin: Springer Heidelberg, 2003. – P. 147–207.
11. **Боргардт Н.И., Зыков А.В., Кукин В.Н., Максимов С.К.** Электронно-микроскопические методы исследования наноструктурированных и нанофазных материалов // Изв. вузов. Электроника. – 2005. – №4–5. – С. 44–51.
12. **Сорокин Л.М., Ефименко Л.П., Калмыков А.Е., Смолин Ю.И.** Электронно-микроскопическое исследование поверхностного слоя сплава алюминий–кремний после лазерного легирования карбидом вольфрама // Физика и техника полупроводников. – 2004. – Т. 46. – Вып. 5. – С. 953–958.
13. **Hÿtch M.J., Snoeck E., Kilaas R.** Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs // Ultramicroscopy. – 1998. – Vol. 74, N. 3. – P. 131–146.

14. Strain Mapping in the TEM. – URL: http://elim.physik.uni-ulm.de/?page_id=1044 (дата обращения: 25.08.2014).

15. Epitaxial tilting of GaN grown on vicinal surfaces of sapphire / *X.R. Huang, J. Bai, M. Dudley et al.* // Appl. Phys. Lett. – 2005. – Vol. 86. – P. 211916-1–211916-3.

Статья поступила
9 сентября 2014 г.

Ловыгин Михаил Вячеславович – аспирант кафедры общей физики МИЭТ. *Область научных интересов:* электронно-микроскопические методы исследования структуры и состава материалов. **E-mail:** lemi@miec.ru

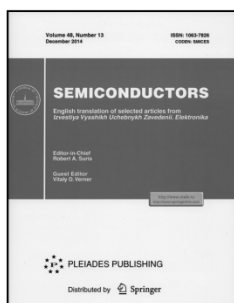
Боргардт Николай Иванович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой общей физики МИЭТ. *Область научных интересов:* рассеяние быстрых электронов в твердых телах, электронно-микроскопические методы исследования структуры и состава материалов и нанобъектов, нанометрология, структура твердых тел.

Зайбт Михаэль – профессор 4-го Физического института Геттингенского университета, Германия. *Область научных интересов:* просвечивающая электронная микроскопия, дефекты в полупроводниковых материалах, структура твердых тел.

Казаков Игорь Петрович – доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией молекулярно-пучковой эпитаксии Физического института им. П.Н. Лебедева РАН (г. Москва). *Область научных интересов:* технология и физические свойства полупроводниковых и металлических гетероструктур, молекулярно-пучковая эпитаксия, оптическая спектроскопия поверхности.

Цикунов Андрей Васильевич – научный сотрудник лаборатории молекулярно-пучковой эпитаксии Физического института им. П.Н. Лебедева РАН (г. Москва). *Область научных интересов:* технология и физические свойства полупроводниковых и металлических гетероструктур, молекулярно-пучковая эпитаксия, анализ состава поверхности твердого тела.

Уважаемые авторы и читатели!



Вышел в свет журнал
SEMICONDUCTORS

English translation of selected articles from
Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedenii. Elektronika. –
Vol. 48, N 13, 2014. - ISSN: 1063-7826

<http://www.maik.ru>
<http://www.springerlink.com>