

ISSN 1606-867X (Print) ISSN 2687-0711 (Online)

Конденсированные среды и межфазные границы

https://journals.vsu.ru/kcmf/

Оригинальные статьи

Научная статья УДК 621.892 https://doi.org/10.17308/kcmf.2022.24/9851

Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности тонких пленок In_xGa_{1-x}As на подложке GaAs (100)

О. В. Девицкий^{1,2⊠}, А. А. Захаров ¹, Л. С. Лунин ^{1,2}, И. А. Сысоев ¹, А. С. Пащенко ^{1,2}, Д. С. Вакалов ², О. М. Чапура ²

¹Федеральный исследовательский центр Южный научный центр РАН, пр. Чехова, 41, Ростов-на-Дону 344006, Российская Федерация

²Северо-Кавказский федеральный университет, ул. Пушкина, 1, Ставрополь 355017, Российская Федерация

Аннотация

Представлены результаты исследования структуры и морфологии поверхности тонких пленок $In_x Ga_{1-x}$ As на подложке GaAs. Тонкие пленки были получены методом магнетронного распыления из специально сформированной мишени $In_{0.45}$ Ga_{0.55}As в атмосфере аргона.

Полученные образцы тонких пленок исследовали методами комбинационного рассеяния света, атомно-силовой микроскопии, сканирующей электронной микроскопии и энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии. Показано, что зерна пленок, полученных при температуре подложки ниже 600 °C не имеют огранки и образованы сращиванием зерен с размером 30–65 нм. При температуре подложки 600 °C пленка состояла из субмикронных зерен с хорошо заметной огранкой.

Определено, что с увеличением температуры подложки средний размер зерна увеличивается, а среднеквадратическая шероховатость тонких пленок снижается. Наилучшими структурными свойствами обладают тонкие пленки, полученные при температуре подложки 600 °C.

Ключевые слова: магнетронное распыление, тонкие пленки, комбинационное рассеяние света, морфология поверхности, соединения А³В⁵

Благодарности: работа выполнена в рамках государственного задания Федерального исследовательского центра Южного научного центра РАН номер государственной регистрации 122020100326-7, а также с использованием ресурсов центра коллективного пользования Северо Кавказского федерального университета и при финансовой поддержке Минобрнауки России, уникальный идентификатор проекта RF-2296.61321X0029 (соглашение № 075-15-2021-687).

Благодарности: авторы выражают благодарность СКФУ за помощь в рамках конкурса поддержки проектов научных групп и отдельных ученых Северо-Кавказского федерального университета.

Для цитирования: Девицкий О. В., Захаров А. А., Лунин Л. С., Сысоев И. А., Пащенко А. С., Вакалов Д. С., Чапура О. М. Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности тонких пленок In_xGa_{1-x}As на подложке GaAs (100). *Конденсированные среды и межфазные границы*. 2022;24(3): 300–305. https://doi.org/10.17308/ kcmf.2022.24/9851

For citation: Devitsky O. V., Zakharov A. A., Lunin L. S., Sysoev I. A., Pashchenko A. S., Vakalov D. S., Chapura O. M. Influence of magnetron sputtering conditions on the structure and surface morphology of In_xGa_{1-x}As thin films on a GaAs (100) substrate. *Condensed Matter and Interphases*. 2022;24(3): 300–305. https://doi.org/10.17308/kcmf.2022.24/9851

[©] Девицкий О. В., Захаров А. А., Лунин Л. С., Сысоев И. А., Пащенко А. С., Вакалов Д. С., Чапура О. М., 2022



Контент доступен под лицензией Creative Commons Attribution 4.0 License.

Девицкий Олег Васильевич, e-mail: v2517@rambler.ru

О. В. Девицкий и др. Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности...

1. Введение

Полупроводниковые соединения А³В⁵ являются важнейшими и широко востребованными материалами в фотовольтаике и оптоэлектронике. Наиболее распространенными методами для получения тонких пленок и гетероструктур соединений А³В⁵ на сегодняшний день являются методы: молекулярно-лучевая эпитаксия, химическое осаждение из паровой фазы металлоорганических соединений, ионно-лучевое осаждение, импульсное лазерное напыление [1–5]. Другим методом получения тонких пленок соединений А³В⁵ является магнетронное распыление. Этим методом уже были получены тонкие пленки GaSb, Al_xGa_{1-x}N, In_xAl_{1-x}N, GaAs_{1-y}N_y, $In_{y}Ga_{1-y}N$, а также $In_{y}Ga_{1-y}As$ на различных подложках [6–12]. Твердый раствор In Ga, "As имеет широкое применение в современной оптоэлектронике [13], однако получение тонких пленок методом магнетронного распыления, несмотря на свою актуальность, требует решения некоторых задач. В большей степени они связаны с недостаточным изучением влияния параметров магнетронного распыления на свойства тонких пленок In Ga, As. Существует некоторое количество работ, в которых используется техника совместного распыления из мишеней GaAs и In с высокой степенью чистоты [14], либо чередованием слоев GaAs и In соответственно. Такая техника имеет определенные преимущества, но значительно усложняет процесс магнетронного распыления. Более целесообразно использование мишеней с заданным составом твердого раствора In Ga1_, As, процесс изготовления которых описан в работе [5].

Целью настоящей работы является выращивание методом магнетронного напыления тонких пленок $In_xGa_{1-x}As$, а также исследование их структурных свойств и морфологии поверхности.

2. Экспериментальная часть

В данной работе сообщается о получении тонких пленок $In_xGa_{1-x}As$ на подложках GaAs (100) методом магнетронного распыления из мишени с расчётным составом $In_{0.45}Ga_{0.55}As$. Мишень формировалась методом спекания в атмосфере чистого водорода при температуре 700 °С порошков GaAs и InAs в течении 120 минут. Тонкие пленки $In_xGa_{1-x}As$ осаждались на GaAs (100) при помощи магнетрона РМ1-60/1-02-02 ИТ в атмосфере аргона при давлении 8 Па. Расстояние от мишени до подложки – 100 мм, мощность распыления мишени – 1.8 Вт/см². Время осаждения для всех образцов составляло 60 минут, а температура подложки изменялась от 400 до 600 °C. Толщина всех образцов тонких пленок составляла 0.42 мкм.

Микрофотографии поверхности и состав анализировали с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) MIRA3-LMH с системой определения элементного состава AZtecEnergy Standard/X-max20(standard). Толщина слоя определялась по микрофотографиям сколов в режиме контрастной топографии (SE-детектор). Структурные свойства исследовались методом комбинационного рассеяния света (КРС) на спектрометре inVia Raman Microscope (Renishaw) с длиной волны возбуждения лазера 514 нм при комнатной температуре. Исследование морфологии поверхности тонких пленок проводились на атомно-силовом микроскопе (ACM) Ntegra Aura.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1-2 представлены СЭМ-изображения поверхности тонких пленок In, Ga₁₋As на GaAs, выращенные при температуре подложки 400 и 600 °С. Из представленных изображений видно, что поверхность обеих пленок состоит из зерен, которые при увеличении температуры подложки до 600 °C приобретают огранку. Кроме этого на поверхности всех образцов тонких пленок присутствовали микрокапли (рис. 1б). Размер микрокапель не превышал 2 мкм, а их плотность составляла около 0.06 мкм⁻² для тонкой пленки, полученной при 400 °С. Для тонких пленок, полученных при 500 и 600 °С микрокапли практически отсутствовали. Из представленных результатов видно, что для тонких пленок, полученных при 400 °C, наблюдается неклассический механизм роста, смысл которого заключается в ориентированном сращивании малых кристаллических зерен в поверхности более крупного зерна [15–16]. Поверхность пленок имеет достаточно высокую шероховатость, и наблюдаются зерна размером около 260 нм с неявно выраженными границами и полным отсутствием огранки. При увеличении температуры подложки до 500 °C на поверхности наблюдалось увеличение числа более крупных зерен (до 320 нм) со слабо выраженной огранкой. На поверхности пленки, выращенной при 600 °C, присутствует большое количество однородных зерен многогранной формы. Размер этих зерен не превышает 560 нм. Очевидно, что при увеличении размера зерна происходит улучшение структурных свойств пленки.

О.В. Девицкий и др. Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности...



Рис. 1. СЭМ-изображение поверхности тонкой пленки In_xGa_{1-x}As на подложке GaAs, выращенной методом магнетронного распыления при температуре 400 °C в режиме регистрации вторичных электронов при 10 кВ, 64 кВ (а) и 20 кВ (б)



а

б

Рис. 2. СЭМ-изображение поверхности (а) и скола (б) тонкой пленки In Ga_{1-x}As на подложке GaAs, выращенной методом магнетронного распыления при температуре 600 °C

Энергодисперсионный анализ показал, что пленки, выращенные при 400 и 500 °С, имеют состав близкий к In_{0.32}Ga_{0.68}As, в то время как для пленки, выращенной при 600 °С, наблюдалось более высокое содержание индия – In_{0.43}Ga_{0.57}As. Наиболее вероятным объяснением этому является то, что при низких значениях температуры подложки содержание индия в тонкой пленке снижается за счет сегрегации индия.

Для более полного изучения поверхности тонких пленок были проведены ACM-исследования морфологии поверхности (рис. 3) и определена среднеквадратическая шероховатость поверхности (RMS). Было показано, что с увеличением температуры подложки от 400 до



Рис. 3. АСМ-изображения тонких пленок $In_xGa_{1-x}As$ на подложке GaAs, выращенных методом магнетронного распыления при температуре 400 °C (а) и 600 °C (б)

600 °C RMS тонких пленок снижается от 32.62 до 26.75 нм соответственно.

Влияние температуры подложки на структурные свойства тонких пленок In Ga1 As также было исследовано по спектрам КРС (рис. 4). На спектрах можно идентифицировать две высокоинтенсивные поперечные (ТО) фононные моды, относящиеся к InAs и GaAs, в частотных интервалах 219-223 см⁻¹ и 245-257 см⁻¹ соответственно. Следует отметить, что для пленки, выращенной при 400 °C, на спектре наблюдается наличие продольной (LO) оптической моды InAs, локализованной на частоте 223 см⁻¹, и низкоинтенсивной GaAs (LO) моды – 287 см⁻¹. Область в диапазоне 110–130 см⁻¹ можно связать с наличием на поверхности пленок микрокапель. Как следует из правил отбора, для идеального кристалла на спектрах КРС должны быть разрешены как ТО, так и LO фононные моды [17]. Очевидно, что тонкие пленки, выращенной при 500 и 600 °С, имеют лучшее структурное совершенство, так как на их спектрах моды InAs (TO) и GaAs (TO) являются доминирующими. Смещение положения фононной моды InAs (TO) относительно положения частоты InAs (TO) моды для объёмного InAs [14] (221 см⁻¹) на 2 см⁻¹ наблюдалось только для пленок, выращенных при 400 и 500 °C, что характерно для тонких пленок при уменьшении в них концентрации In [18-21].

4. Заключение

Таким образом, методом магнетронного распыления были выращены тонкие пленки In_xGa_{1-x}As на подложке GaAs. Методами сканирующей электронной микроскопии, энергодисперсионного анализа показано, что тонкие



Рис. 4. Спектры КРС мишени $In_{0.45}Ga_{0.55}$ Аs и тонких пленок $In_x Ga_{1-x}$ Аs на GaAs, выращенных при разной температуре подложки

пленки $\ln_x Ga_{1-x} As$, полученные при температуре подложки 600 °С имеют состав наиболее близкий к составу распыляемой мишени. Из сравнения СЭМ-изображения поверхности тонких пленок $\ln_x Ga_{1-x} As$ на GaAs видно, что температура подложки сильно влияет на морфологию поверхности и структуру пленки. Результаты исследования спектров комбинационного рассеяния света показали, что наилучшими структурными свойствами обладают тонкие пленки $\ln_x Ga_{1-x} As$, полученные при температуре подложки 600 °С. Представленные экспериментальные данные свидетельствуют о перспективности применения меО.В. Девицкий и др. Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности...

тода магнетронного распыления для выращивания тонких пленок In, Ga,_, As на GaAs.

Заявленный вклад авторов

Девицкий О. В. – идея экспериментов, написание текста, итоговые выводы. Захаров А. А. – проведение исследования. Сысоев И. А. – научное руководство, концепция исследования. Лунин Л. С. – научное руководство, написание обзора и редактирование текста. Пащенко А. С. – написание обзора и редактирование текста, итоговые выводы, Вакалов Д. С. – проведение исследования. Чапура О. М. – проведение исследования.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет известных финансовых конфликтов интересов или личных отношений, которые могли бы повлиять на работу, представленную в этой статье.

Список литературы

1. Wang W., Ma B., Chao Gao H., Long Yu H., Hui Li Z. Low surface roughness GaAs/Si thin-film deposition using three-step growth method in MBE. *Materials Science Forum*. 2020;1014(43): 43–51. https://doi. org/10.4028/www.scientific.net/MSF.1014.43

2. Devitsky O. V., Nikulin D. A., Sysoev I. A. Pulsed laser deposition of aluminum nitride thin films onto sapphire substrates. *Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics.* 2020;20(2): 177–184. https://doi.org/10.17586/2226-1494-2020-20-2-177-184

3. Lunin L. S., Devitskii O. V., Sysoev I. A., Pashchenko A. S., Kas'yanov I. V., Nikulin D. A., Irkha V. A. Ion-beam deposition of thin AlN films on Al_2O_3 substrate. *Technical Physics Letters*. 2019;45(24): 1237. https://doi.org/10.1134/S106378501912023X

4. Zhu H., Chen Y., Zhao Y., Li X., Teng Y., Hao X., Liu J., Zhu H., Wu Q., Huang Y., Huang Y. Growth and characterization of InGaAs/InAsSb superlattices by metal-organic chemical vapor deposition for mid-wavelength infrared photodetectors. *Superlattices and Microstructures*. 2020;146: 106655. https://doi. org/10.1016/j.spmi.2020.106655

5. Pashchenko A. S., Devitsky O. V., Lunin L. S., Kasyanov I. V., Nikulin D. A., Pashchenko O. S. Structure and morphology of GaInAsP solid solutions on GaAs substrates grown by pulsed laser deposition. *Thin Solid Films*. 2022;743 139064. https://doi.org/10.1016/j. tsf.2021.139064

6. Bernal-Correaa R., Gallardo-Hernández S., Cardona-Bedoyac J., Pulzara-Mora A. Structural and optical characterization of GaAs and InGaAs thin films deposited by RF magnetron sputtering. *Optik*. 2017;145: 608-616. https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2017.08.042 7. Zelaya-Angel O., Jiménez-Sandoval S., Alvarez-Fregoso O., Mendoza-Alvarez J.G., Gómez-Herrera1 M.L., Cardona-Bedoya J., Huerta-Ruelas J. Rhombohedral symmetry in GaAs_{1-x}N_x nanostructures. *Semiconductor Science and Technology*. 2021;36(4): 045026. https://doi.org/10.1088/1361-6641/abe319

8. Mantarcı A. Comparison of optical, electrical, and surface characteristics of InGaN thin flms at non-fow and small nitrogen fow cases. *Optical and Quantum Electronics*. 2021;53:544. https://doi. org/10.1007/s11082-021-03203-4

9. Nishimoto N., Fujihara J. Characterization of GaSb thin films with excess Ga grown by RF magnetron sputtering. *International Journal of Modern Physics B*. 2020;34(1020): 2050097. https://doi.org/10.1142/S0217979220500976

10. Othman N.A., Nayan N., Mustafa M.K., Azman Z., Hasnan M.M.I.M., Bakri A.S., Jaffar S.N., Abu Bakar A.S., Mamat M.H., Mohd Yusop M.Z., Ahmad M.Y. Structural and Morphological Properties of AlGaN Thin Films Prepared by Co-sputtering Technique. In: *Proceedings - 2021 IEEE Regional Symposium on Micro and Nanoelectronics. 13th IEEE Regional Symposium on Micro and Nanoelectronics, 2 -4 August 2021.* Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc., 2021. 171420. p. 20 – 23. https://doi.org/10.1109/ RSM52397.2021.9511605

11. Mulcue L.F., de la Cruz W., Saldarriaga W. Efect of flm thickness on morphological, structural and electrical properties of InAlN thin layers grown on glass at room temperature. *Applied Physics A*. 2021;127: 479. https://doi.org/10.1007/s00339-021-04618-2

12. Ferhati H., Djeffal F., Bendjerad A., Benhaya A., Saidi A. Perovskite/InGaAs tandem cell exceeding 29% efficiency via optimizing spectral splitter based on RF sputtered ITO/Ag/ITO ultra-thin structure. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*. 2021;128: 114618. https://doi.org/10.1016/j.physe.2020.114618

13. Kao Y. C., Chou H. M., Hsu S. C., Lin A., Lin C. C., Shih Z. H., Chang C. L., Hong H. F., Horng R. H. Performance comparison of III–V//Si and III–V//InGaAs multi-junction solar cells fabricated by the combination of mechanical stacking and wire bonding. *Scientific Reports*. 2019;9 4308. https://doi.org/10.1038/ s41598-019-40727-y

14. Bernal-Correa R., Torres-Jaramillo S., Pulzara-Mora C., Montes-Monsalve J., Gallardo-Hernández S., López - López M., Cardona-Bedoya J., Pulzara-Mora A. In _xGa_{1-x}As obtained from independent target via co-sputtering deposition. *Journal of Physics: Conference Series.* 2017;850:012013. https://doi.org/10.1088/1742-6596/850/1/012013

15. Fedorov P. P., Mayakova M. N., Gaynutdinov R. V., Tabachkova N. Yu., Komandin G. A., Baranchikov A. E., Chernova E. V., Kuznetsov S. V., Ivanov V. K., Osiko V. V. Investigation of the deposition of calcium О. В. Девицкий и др. Влияние условий магнетронного распыления на структуру и морфологию поверхности...

fluoride nanoparticles on the chips of CaF₂ single crystals. *Condensed Matter and Interphases*. 2021;23(4): 607–613. https://doi.org/10.17308/kcmf.2021.23/3681

16. Colfen H. Nonclassical nucleation and crystallization. *Crystals*. 2020;10(2): 61. https://doi. org/10.3390/cryst10020061

17. Loudon R., The Raman effect in crystals. *Advances in Physics*. 1964;52(13): 423-482. https://doi. org/10.1080/00018736400101051

18. Greene L. H., Dorsten J. F., Roshchin I. V., Abeyta A. C., Tanzer T. A., Feldmann W. L., Bohn P. W. Optical detection of the superconducting proximity effect: Raman scattering on Nb/InAs. *Czechoslovak Journal of Physics Supplement*. 1996;46(2): 741. https:// doi.org/10.1007/BF02583678

19. Pulzara-Mora A., Montes-Monsalve J., Bernal-Correa R., Morales-Acevedo A., Gallardo-Hernández S., López-López M. Structural, optical and morphological properties of $In_xGa_{1-x}As$ layers obtained by RF magnetron sputtering. *Superficies y Vacío*. 2016;29(2) 32–37. Режим доступа: https://superficiesyvacio. smctsm.org.mx/index.php/SyV/article/view/47/31

20. Kang S., Jeong T. S. Indium composition dependence of Raman spectroscopy and photocurrent of $In_xGa_{1-x}As$ strained layers grown by using MOCVD. *Journal of the Korean Physical Society*. 2020;76(3): 231. https://doi.org/10.3938/jkps.76.231

21. Groenen J., Carles R., Landa G. Optical-phonon behavior in Ga_{1-x}In_xAs: the role of microscopic strains and ionic plasmon coupling. *Physical Review B*. 1998;58(16): 10452–10462. https://doi.org/10.1103/ physrevb.58.10452

Информация об авторах

Девицкий Олег Васильевич, к. т. н., с. н. с. лаборатории физики и технологии полупроводниковых наногетероструктур для СВЧ-электроники и фотоники, Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук (Ростов-на-Дону, Российская Федерация); с. н. с. научно-образовательного центра фотовольтаики и нанотехнологии, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0003-3153-696X v2517@rambler.ru

Захаров Алексей Андреевич, м. н. с. научно-образовательного центра фотовольтаики и нанотехнологии, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0003-0379-9383

v2517@rambler.ru

Сысоев Игорь Александрович, д. т. н., директор, научно-образовательный центр фотовольтаики и нанотехнологии, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0001-5415-0782

v2517@rambler.ru

Лунин Леонид Сергеевич, д. ф.-м. н., г. н. с. лаборатории физики и технологии полупроводниковых наногетероструктур для СВЧ-электроники и фотоники, Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук (Ростов-на-Дону, Российская Федерация); г. н. с. научно-образовательного центра фотовольтаики и нанотехнологии, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0002-5534-9694 lunin ls@mail.ru

Пащенко Александр Сергеевич, к. ф.-м. н., с. н. с., заведующий лабораторией физики и технологии полупроводниковых наногетероструктур для СВЧэлектроники и фотоники, Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук (Ростов-на-Дону, Российская Федерация); с. н. с. научно-образовательного центра фотовольтаики и нанотехнологии, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0002-7976-9597 as.pashchenko@gmail.com

Вакалов Дмитрий Сергеевич – к. ф.-м. н., заведующий научно-исследовательской лабораторией физико- химических методов анализа научно-лабораторного комплекса чистых зон физико-технического факультета, Северо-Кавказский федеральный университет (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0001-6788-3811 megadims@gmail.com

Чапура Олег Михайлович, инженер кафедры физической электроники физико-технического факультета, Северо-Кавказский федеральный университет, (Ставрополь, Российская Федерация).

https://orcid.org/0000-0002-6691-0010 chapurol-7@mail.ru

Поступила в редакцию 07.02.2022; одобрена после рецензирования 04.03.2022; принята к публикации 15.05.2022; опубликована онлайн 25.06.2022.