

УДК 621.315.592

# Исследование процесса распада пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe методом сканирующей зондовой микроскопии

© С.С. Хлудков<sup>¶</sup>, И.А. Прудаев, В.А. Новиков\*, О.П. Толбанов, И.В. Ивонин\*

Сибирский физико-технический институт им. В.Д. Кузнецова при Томском государственном университете, 634050 Томск, Россия

\* Томский государственный университет, 634050 Томск, Россия

(Получена 30 декабря 2009 г. Принята к печати 18 января 2010 г.)

С помощью атомно-силового микроскопа проведено исследование процесса распада пересыщенного твердого раствора арсенида галлия, легированного железом (GaAs:Fe). Образцы GaAs:Fe получали в процессе высокотемпературной диффузии Fe в GaAs и последующего отжига при температуре на 200°C ниже температуры легирования. Измерения проведены на поперечных сколах по плоскости спайности пластин GaAs:Fe. Показано, что в процессе отжига GaAs:Fe происходит распад пересыщенного твердого раствора с образованием частиц второй фазы размером от ~ 50 нм до ~ 1 мкм. Частицы второй фазы обладают ферромагнитными свойствами при комнатной температуре.

## 1. Введение

Арсенид галлия, легированный железом (GaAs:Fe), используется для изготовления ряда приборов: переключающих S-диодов, фотоприемников [1]. В последнее время он привлекает внимание исследователей, занимающихся проблемами спинтроники [2]. Легирование арсенида галлия железом осуществляется в процессе выращивания кристаллов [3], диффузии, ионного легирования и газовой эпитаксии [1], молекулярно-лучевой эпитаксии [4–6]. В настоящем сообщении приведены результаты исследования GaAs:Fe, легированного Fe в процессе высокотемпературной диффузии и подвергнутого низкотемпературному отжигу, с использованием методики атомно-силовой микроскопии (АСМ).

## 2. Методика эксперимента

Легирование GaAs осуществлялось в процессе диффузии при температурах 1100°C из напыленных с двух сторон пластины GaAs слоев железа в откачанных ампулах при давлении паров мышьяка 1 атм по методике [7]. Использовались пластины GaAs, ориентированные по плоскости (100), толщиной 400 мкм из двух слитков, выращенных по методу Чохральского и легированных теллуром. Исходная концентрация электронов составляла  $6 \cdot 10^{16}$  и  $1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , плотность дислокаций  $5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-2}$ . В результате диффузии пластины GaAs были легированы железом на всю толщину. Распределение Fe по глубине пластины имело седлообразный вид: концентрация в глубине пластины составляла  $(2-3) \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , вблизи поверхности —  $(5-6) \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . Удельное сопротивление GaAs в результате компенсации железом составляло  $10^4-10^5 \text{ см}^{-3}$ . Затем часть полученного таким образом

материала отжигалась при 900°C в течение 3 ч также в ампулах при 1 атм мышьяка. Для проведения измерений на АСМ пластины GaAs раскалывались по плоскости спайности. При этом полагали, что при наличии включений второй фазы и сопровождающих их механических напряжений раскалывание пластин будет происходить таким образом, что частицы второй фазы можно будет обнаружить на сколе с помощью АСМ.

Измерения проводились в середине свежеприготовленного скола. Исследования в данной работе проводились с использованием коммерческого микроскопа „Solver HV“ (фирма НТ-МДТ). В процессе поддерживалось постоянное количество точек ( $256 \times 256$ ), скорость сканирования составляла 2 Гц, использовали зонды марки NSG10/Co (кремниевые зонды, покрытые 30 нм слоем ферромагнитного сплава Co–Cr). Радиус закругления зондов составлял 35 нм. Были использованы два режима АСМ: режим получения топографии и магнитосиловая микроскопия (МСМ) в полуконтактном режиме. Последний режим представляет собой двухпроходную методику измерения, в процессе которой на первом проходе измеряется рельеф поверхности, а затем зонд отводится на заданное расстояние, чтобы произвести исследование распределения магнитного поля между иглой и поверхностью.

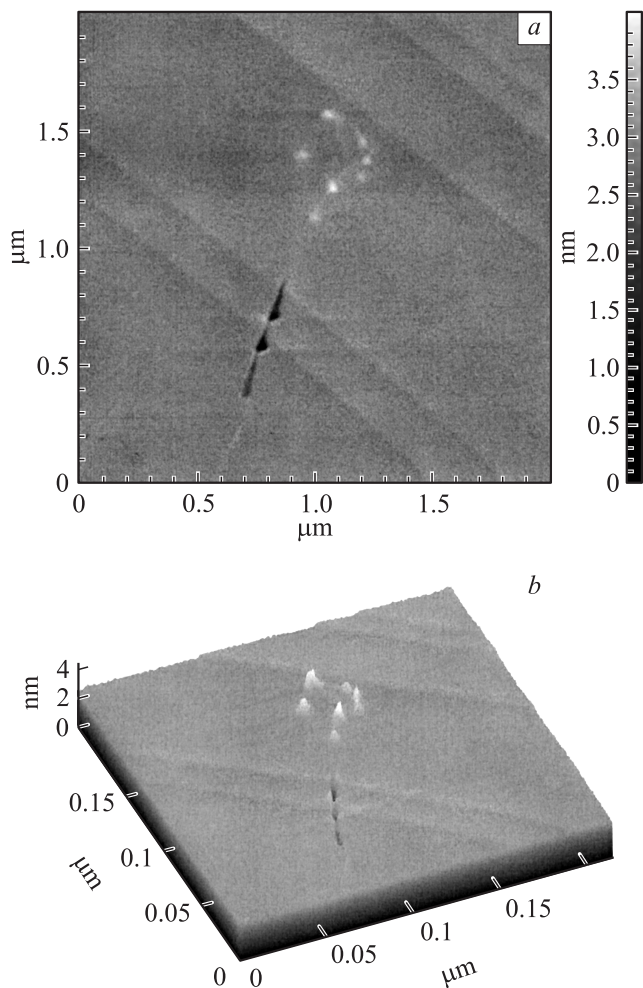
## 3. Результаты экспериментов

Измерения, проведенные на АСМ, показали следующее. На поверхности сколов образцов GaAs:Fe, подвергнутых дополнительному низкотемпературному отжигу, присутствуют локальные неоднородности рельефа в области атомарно-гладкой поверхности, размер которых, как правило, составляет порядка 50–100 нм в диаметре и 1.5–3 нм в высоту. Типичная картина приведена на рис. 1. На данном рисунке видны неоднородности рельефа: скопления выступов, диаметр каждого

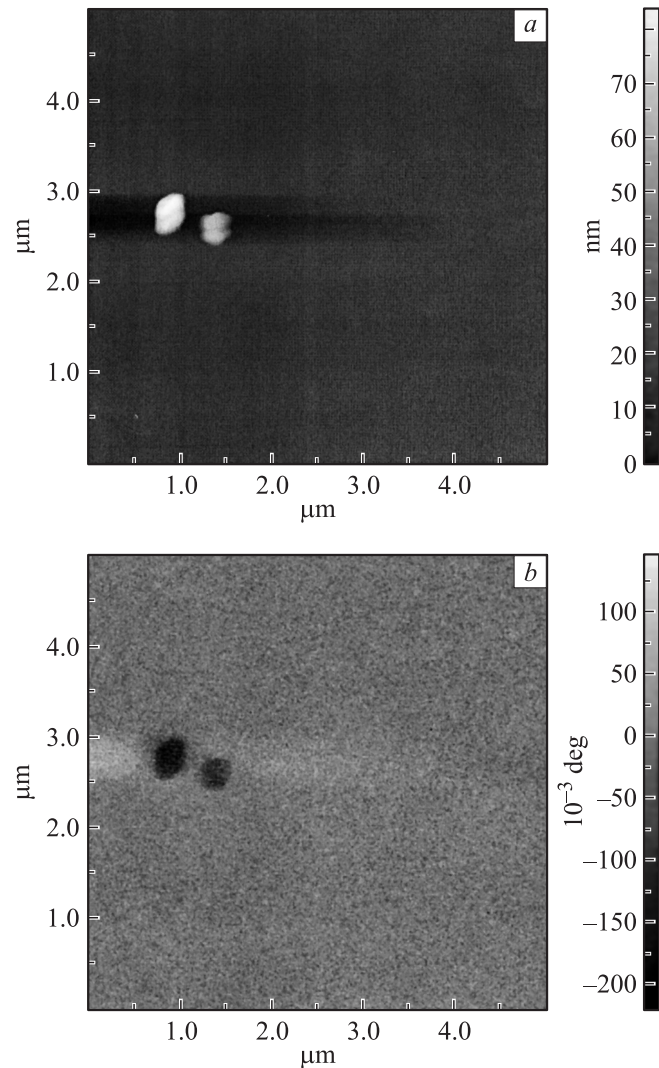
<sup>¶</sup> E-mail: Khludkov@pochta.ru

из которых  $\sim 60$  нм, высота  $\sim 2$  нм. Наблюдающиеся на АСМ неоднородности, видимо, представляют собой включения второй фазы, образованные в результате распада пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe в процессе низкотемпературного отжига. Из АСМ изображений также видно, что включения, как правило, распределены неоднородно. При этом следует отметить, что на поверхности противоположного скола присутствуют ямки таких же размеров и формы, что и выступы. На поверхности скола присутствуют и более крупные включения (до 1 мкм). АСМ изображения крупных включений приведены на рис. 2: видны два включения диаметром  $\sim 0.4$  мкм, высотой  $\sim 80$  нм. Из картины МСМ (рис. 2, *b*) видно, что под воздействием магнитных сил происходит изменение фазы колебаний иглы.

Измерения на АСМ были проведены и на образцах с резким охлаждением. Они показали, что включения второй фазы наблюдаются, но значительно меньших размеров. Вероятно, их образование обусловлено недостаточно высокой для закалки скоростью охлаждения.



**Рис. 1.** АСМ изображение рельефа поверхности скола GaAs:Fe: *a* — двумерное изображение, *b* — трехмерное изображение.



**Рис. 2.** Изображение поверхности скола GaAs:Fe: *a* — АСМ топография, *b* — МСМ изображение.

#### 4. Обсуждение результатов

Отметим, что данные по исследованию распада пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe нам не известны.

Обычно низкотемпературная обработка материала имеет место либо в процессе охлаждения после осуществления легирования, которое обычно происходит при высокой температуре, либо при технологических операциях изготовления приборов: создания омических контактов и других. Мы исследовали низкотемпературную обработку материала при температуре на  $100\text{--}200^\circ\text{C}$  ниже температуры основного легирования. При этом имеет место существенное уменьшение предельной растворимости (для Fe в GaAs примерно на порядок), а миграционная способность примесных атомов Fe в GaAs остается достаточно высокой [7,8]. В результате должен происходить распад пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe — атомы примеси будут уходить из твердого раствора и выделяться на дефектах решетки

в виде второй фазы. Это, с одной стороны, приводит к уменьшению электрически активных атомов примеси, а с другой — к образованию наночастиц второй фазы.

Из исследованных систем, видимо, наиболее близка нашему случаю система GaAs:Cu [9]. По данным [9], распад пересыщенного твердого раствора GaAs:Cu происходит с выделением частиц второй фазы на дислокациях (декорирование дислокаций), а также в объеме кристалла. Распад идет преимущественно по плоскостям (111), выделение частиц сопровождается образованием дислокационных петель и дефектов упаковки.

Дадим качественную оценку процесса распада пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe на основе представлений, изложенных в [9]. Согласно данным [7,8], в соответствии с использованными нами режимами легирования (1100°C) и отжига (900°C, 3 ч) концентрация железа в исследуемой области изучаемых нами образцов составляет  $\sim 3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . При этом предельная растворимость Fe в GaAs при 900°C составляет  $\sim 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . Распад пересыщенного твердого раствора GaAs:Fe будет лимитироваться процессом диффузии. Коэффициент диффузии Fe в GaAs при 900°C составляет  $10^{-9} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$  и соответствующая длина диффузии атомов Fe при 3-часовом отжиге составляет  $\sim 30 \text{ мкм}$ . Тогда, даже если избыточные атомы Fe будут „высаживаться“ только на дислокациях, 3-часового отжига вполне достаточно, чтобы избыточные одиночные атомы примеси перешли во вторую фазу (частицы второй фазы, кластеры и комплексы). Таким образом, в процессе отжига при 900°C избыточная концентрация атомов Fe в GaAs:Fe, легированном при 1100°C, которые должны перейти в твердый раствор, составит  $\sim 2.3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ .

Если в соответствии с диаграммой состояния [10] считать, что частицы второй фазы будут тройного состава Ga–Fe–As, то полный объем второй фазы будет составлять  $\sim 2 \cdot 10^{-5} \text{ см}^3 = 2 \cdot 10^7 \text{ мкм}^3$ . При среднем линейном размере частиц второй фазы порядка 1 мкм плотность частиц будет порядка  $10^8 \text{ см}^{-3}$ , при размере  $\sim 0.1 \text{ мкм} = 10^{11} \text{ см}^{-3}$ . В первом случае среднее расстояние между частицами будет составлять 100 мкм, во втором — 10 мкм.

## 5. Заключение

Таким образом, измерения с помощью атомно-силового микроскопа, проведенные на поперечных сколах по плоскости спайности арсенида галлия, легированного железом в процессе высокотемпературной диффузии и отожженного при температуре на 200°C ниже температуры легирования, показали, что в процессе отжига GaAs:Fe происходит распад пересыщенного твердого раствора с образованием частиц второй фазы размером от  $\sim 50$  до  $\sim 1 \text{ мкм}$ . Частицы обладают ферромагнитными свойствами при комнатной температуре.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 07-02-00314 и 090-02-99028) и Министерства образования и науки РФ (АВЦП 2.1.2/3800).

## Список литературы

- [1] С.С. Хлудков. Вест. Томск. гос. ун-та. Сер. Физика, **285**, 84 (2005).
- [2] I. Zutic, J. Fabian, S. Das Sarma. Rev. Mod. Phys., **76**, 323 (2004).
- [3] Б.П. Попов, В.К. Соболевский, Е.Г. Апушкинский, В.П. Савельев. ФТП, **39** (5), 521 (2005).
- [4] S. Haneda, H. Munekata, Y. Takatani. J. Appl. Phys., **87**, 6445 (2000).
- [5] Y.L. Soo, G. Kioseoglou, S. Huang, S. Kim, Y.H. Kao, Y. Takatani, S. Haneda, H. Munekata. Phys. Rev. B, **63**, 195 209 (2001).
- [6] T. Shinshi, F. Kato, A. Shimokohbe. Appl. Phys. Lett., **83** (16), 3425 (2003).
- [7] И.А. Прудаев, С.С. Хлудков. Изв. вузов. Физика, **51** (11), 39 (2008).
- [8] Б.И. Болтакс, Г.С. Куликов, И.Н. Никулица, Ф.С. Шишияну. Изв. АН СССР. Неорг. матер., **11** (2), 348 (1975).
- [9] В.И. Фистуль. Распад пересыщенных полупроводниковых твердых растворов (М., Металлургия, 1977).
- [10] М.Г. Мильвидский, О.В. Пелевин, Б.А. Сахаров. Физико-химические основы получения разлагающихся полупроводниковых соединений (М., Металлургия, 1974).

Редактор Л.В. Беляков

## Study of decomposition of oversaturated solid solution of GaAs:Fe using scanning probe microscopy

S.S. Khludkov, I.A. Prudaev, V.V. Novikov\*,  
O.P. Tolbanov, I.V. Ivonin\*

Kuznetsov Siberian Physicotechnical Institute,  
Tomsk State University,  
634050 Tomsk, Russia  
\* Tomsk State University  
634050 Tomsk, Russia

**Abstract** Study of decomposition of oversaturated solid solution of gallium arsenide doped by iron (GaAs:Fe) is realized by means of atomic force microscope. GaAs:Fe plates are made by high temperature diffusion of Fe into GaAs and subsequently annealing at temperature 200°C below than doping temperature. Measurements were made at cross chip on cleavage plane of GaAs:Fe plates. It is shown that decomposition of oversaturated solid solution of GaAs:Fe occur in process of annealing and precipitate particles are formed with dimensions from  $\sim 50 \text{ nm}$  to  $\sim 1 \text{ }\mu\text{m}$ . Precipitate particles have ferromagnetic properties at room temperature.