УДК 539.23

DOI: 10.21779/2542-0321-2025-40-4-18–28

Ш. П. Фараджев, М. Х. Рабаданов, А. Э. Рабаданова, С. Х. Гаджимагомедов, Д. К. Палчаев, И. М. Абдулагатов, Ж. Х. Мурлиева, Н. М.-Р. Алиханов

Тонкие пленки на основе Al_2O_3, полученные методом атомно-слоевого осаждения: формирование, структурные и электрические характеристики

Дагестанский государственный университет; Россия, 367000, г. Махачкала, ул. М. Гаджиева, 43а; faradzhev22@mail.ru

Аннотация. Пленки с аморфной структурой на основе Al_2O_3 с различной толщиной были выращены на подложке Si методом атомно-слоевого осаждения (АСО) с использованием триметилалюминия (ТМА) и воды H_2O в качестве прекурсоров при температуре 180 °С. В результате были изготовлены несколько серий плёнок, соответствующих 100, 200, 300, 400 и 500 циклам осаждения. Показано, что толщина осаждённого слоя линейно зависит от числа циклов АСО. Средний прирост толщины за один цикл составил около 0.115 нм/цикл. Проведены комплексные исследования структурных и электрических характеристик пленок. Наиболее гладкие и стабильные слои формируются при 100–200 циклах, а при 300–500 циклах поверхность становится более текстурированной и шероховатой. Установлено, что с увеличением числа циклов осаждения наблюдается рост поверхностного сопротивления и сопротивления растекания.

Ключевые слова: тонкие пленки, оксид алюминия, атомно-слоевое осаждение, нанотехнологии.

Введение

Благодаря высоким химической и термической стабильности и высоким прочностным и изоляционным характеристикам [1–3] оксид алюминия является одним из наиболее перспективных диэлектрических материалов в микро- и наноэлектронике, в оптике и при создании аккумуляторов. Тонкие плёнки на основе Al_2O_3 находят применение в качестве диэлектрических прослоек, барьерных и защитных покрытий, для пассивации поверхности [1–4], создания газового барьера [5] и элементов гетероструктур на основе кремния и других полупроводников [6]. Предполагается, что путем нанесения покрытий Al_2O_3 на кремний можно создавать наноструктуры с высокостабильными оптическими и электрическими свойствами, востребованными на практике [7–12].

Пленки оксида алюминия получают различными методами: химическое осаждение из паровой фазы [13], магнетронное распыление [14], золь-гель процесс [15], импульсное лазерное осаждение [16], осаждение атомных слоев [17, 18] и др. Наиболее эффективным методом получения тонких оксидных плёнок является атомно-слоевое осаждение (АСО). Преимущества этого способа заключаются в саморегулируемой природе поверхностных реакций, обеспечивающих высокую однородность, точный контроль толщины на уровне ангстремов (или монослоя) и равномерное покрытие подложек со сложным рельефом [19, 20]. Оксид алюминия обладает сложной, но в то же время чувствительной к различного рода примесям и дефектам структурой. На начальных стадиях АСО слои Al_2O_3 имеют островковый характер. С возрастанием числа циклов

происходит формирование сплошной аморфной плёнки, структура и свойства которой зависят от температуры процесса, выбора прекурсоров и числа осаждённых монослоёв [21, 22]. Аморфные плёнки Al_2O_3, выращенные при температурах ниже 400 °C, обладают стабильной структурой «ближнего порядка». Они перспективны для применения в оптических устройствах, отвечающих требованиям высокого качества [23]. Однако сложность аморфной структуры и чувствительность к условиям технологического процесса затрудняют контроль или прогнозирование их эксплуатационных характеристик. Поэтому изучение технологии получения ультратонких аморфных структур на основе Al_2O_3, влияния числа циклов осаждения на их характеристики требуют дальнейшего анализа.

В статье приведены результаты исследования структуры и электрических характеристик плёнок Al_2O_3, полученных на кремнии при различных циклах осаждения. Данные результаты будут способствовать оптимизации технологии получения аморфных пленок на основе оксида алюминия высокого структурного совершенства.

Технология и методы исследования

В настоящей работе плёнки Al_2O_3 были получены методом АСО на монокристаллических кремниевых подложках. В качестве прекурсоров были использованы триметилалюминий (ТМА, $C_6H1_8Al_2$) и дистиллированная вода). Предварительно перед осаждением подложки подвергались многостадийной очистке. Процедура очистки включала ультразвуковую обработку в дистиллированной воде с добавлением поверхностноактивных веществ, далее в спирте, а затем повторную обработку в дистиллированной воде. Каждая стадия обработки проводилась в течение 20 минут при температуре 50 °C. После такой очистки образцы высушивались и продувались потоком аргона под давлением. Осаждение проводилось в реакторе при температуре 180 °C и давлении 1 Торр. Подача прекурсоров в реактор осуществлялась в импульсно-продувочном режиме, характерном для АСО-процессов: впрыск ТМА сменялся продувкой азотом и последующим впрыском воды, что обеспечивает саморегулирующийся рост плёнки. В результате были получены несколько серий плёнок, соответствующих 100, 200, 300, 400 и 500 циклам осаждения. Общее время формирования плёнок составляло от 1 до 5 часов в зависимости от количества выполненных циклов.

В процессе атомно-слоевого осаждения Al_2O_3 регистрировалась временная зависимость давления в реакторе (рис. 1). Полученная кривая демонстрирует регулярные циклы, в которых кратковременные пики давления (до 1.45–1.56 Тор) соответствуют импульсной подаче прекурсоров ТМА (1) и H_2O (2), а спады давления (1.18–1.25 Тор) отражают стадии продувки и удаления побочных продуктов. Постоянство амплитуд пиков и повторяемость уровней минимума указывают на стабильную дозировку прекурсоров, эффективную очистку реактора и корректное протекание саморегулируемых стадий АСО. Регулярность давления свидетельствует о воспроизводимом росте плёнки и отсутствии нарушений в работе газовой и вакуумной систем в течение всего процесса [20].

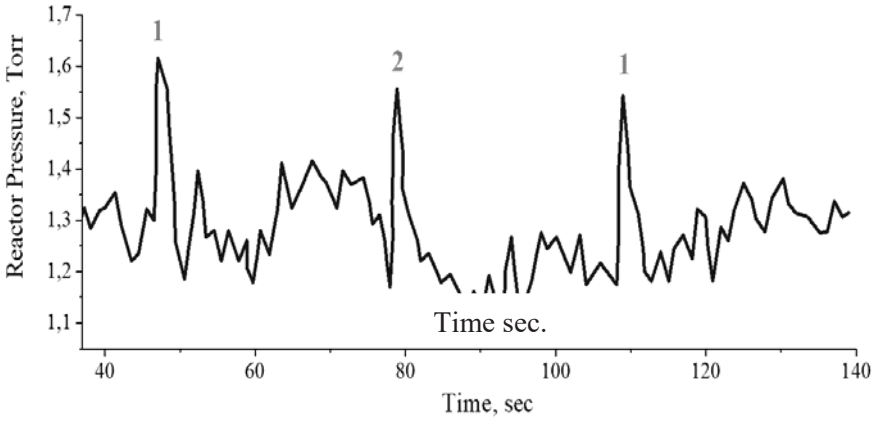


Рис. 1. Временная зависимость давления в реакторе

Исследования морфологии и элементный анализ образцов проводились с использованием сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) Apreo 2C, оснащенного энергодисперсионным рентгеновским (EDX) анализатором и имеющего возможность элементного картирования. Изучение шероховатости и рельефа поверхности осуществлялось с помощью атомно-силового микроскопа Ntegra Spectra. Толщину плёнок определяли с помощью многоволнового эллипсометра Film Sense (FS-серии). Оценка электрических характеристик образцов проводилась на автоматизированном стенде «Остэк». Применялся четырехконтактный метод измерения, реализованный с помощью источника/измерителя Keithley 2635B и соответствующей измерительной головки Signatone HR4-50180TRY.

Результаты и обсуждение

Проведены исследования морфологии полученных аморфных пленок. На рисунке 2 приведены СЭМ изображение, профиль поверхности и распределение элементов образца Al_2O_3, полученного при 300 циклах осаждения. Как видно, поверхность обладает однородной аморфной структурой без дефектов и агломерации, что соответствует типичным особенностям саморегулирующегося роста Al_2O_3.

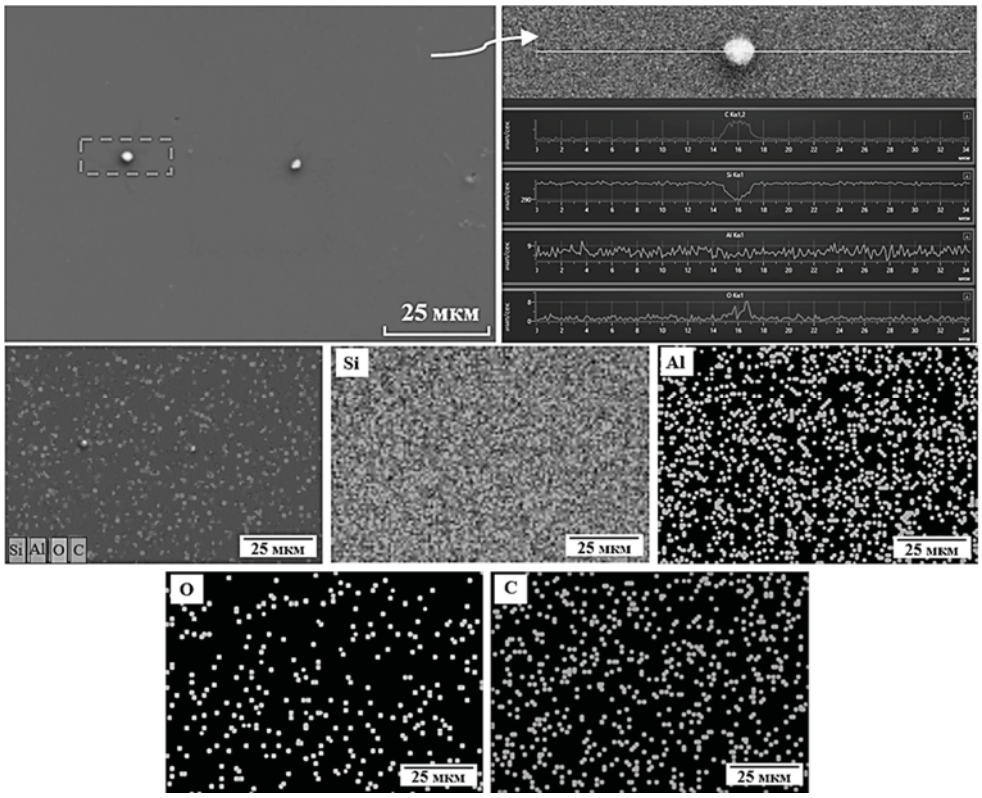


Рис. 2. Морфология поверхности плёнки, линейные профили распределения элементов и картирование элементного состава

Изображения EDX-карт демонстрируют равномерное распределение элементов Al и O по всей поверхности, что свидетельствует о высокой степени гомогенности плёнки и отсутствии побочных реакций, связанных с разложением прекурсора ТМА. Содержание углерода на поверхности плёнки, возможно, связано с адсорбированными атмосферными углеводородами и остатками органических прекурсоров (например, ТМА при АСО).

На рисунке 3 приведены результаты исследования толщины слоев Al_2O_3, выращенных на поверхности кремния, в зависимости от количества циклов. Анализ полученных данных методом эллипсометрии показал, что толщина осаждённого слоя линейно зависит от числа циклов АСО [2; 6]. Средний прирост толщины за один цикл составил около 0.115 нм/цикл, что полностью соответствует типичным значениям для плёнок Al_2O_3, осаждённых методом АСО с использованием ТМА и H_2O. Коэффициент детерминации зависимости толщины пленок от количества циклов равен ~ 0.999, что свидетельствует о высокой степени линейности зависимости.

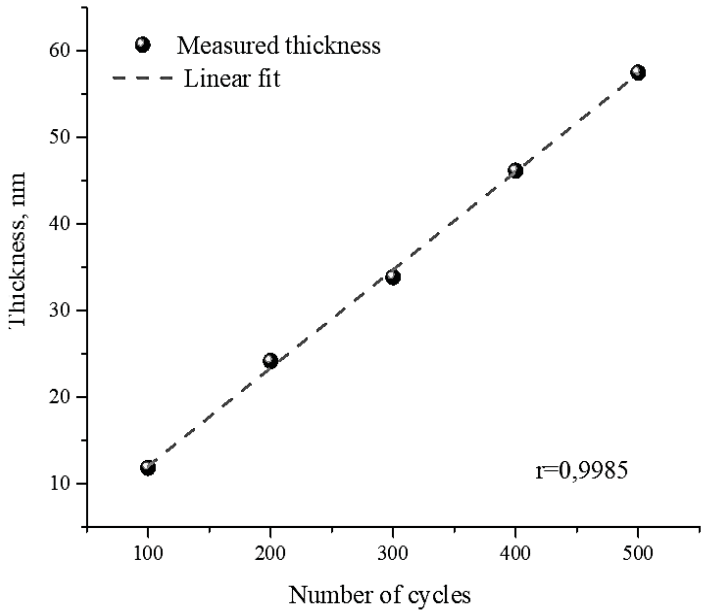


Рис. 3. Зависимость толщины пленок от количества циклов

На рисунках 4 и 5 представлены микрофотографии плёнок Al_2O_3 различной толщины, полученные на АСМ, и динамика шероховатости поверхности для пяти образцов. Сканирование АСМ проводилось на участке размером 5 мкм × 5 мкм в полуконтактном режиме. Сканирование выявило зернистую морфологию всех пленок с близкими значениями среднеквадратичной шероховатости поверхности (RMS) (рис. 5), что свидетельствует о хорошем качестве полученных пленок. Пленки, как правило, получаются однородными и без точечных дефектов благодаря хаотичности потока прекурсора и самоограничению поверхностных реакций. Основным фактором эффективности реакций является образование очень прочной связи Al–O. Доза реагента, температура осаждения и т. д. практически не влияют на реакцию [17].

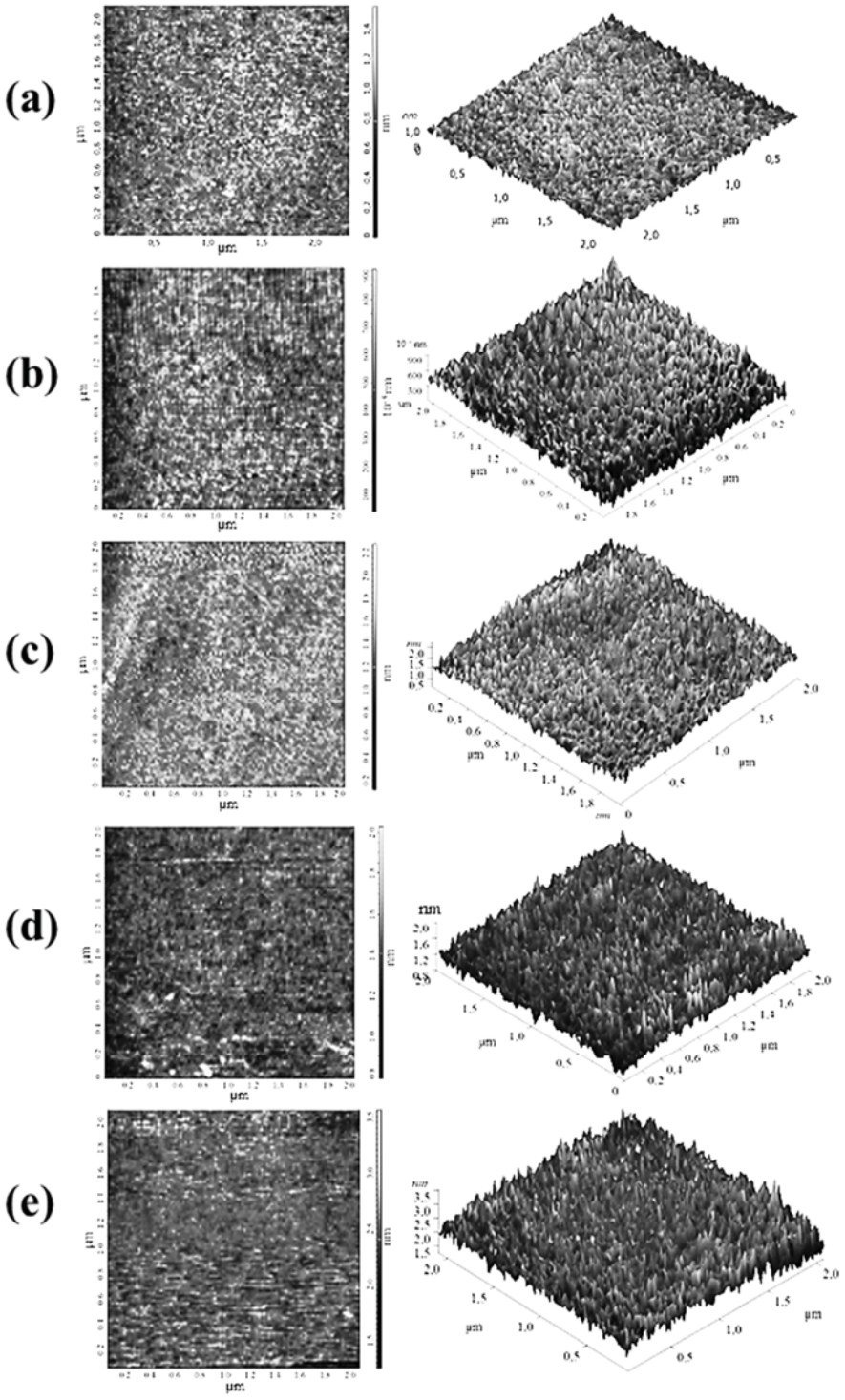


Рис. 4. Микрофотографии, полученные с помощью АСМ для осажденных пленок Al_2O_3 различной толщины: (a) – 100 циклов, (b) – 200 циклов, (c) – 300 циклов, (d) – 400 циклов, (e) – 500 циклов

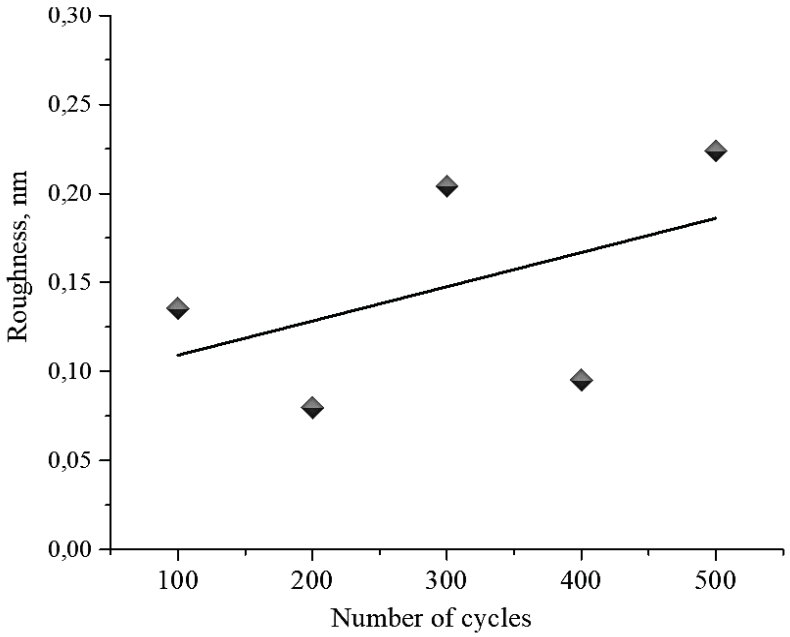


Рис. 5. Динамика шероховатости поверхности в зависимости от количества циклов

Для плёнок при 100–200 циклах характерны низкие значения параметров средней шероховатости (S_a) – около 0.1 нм, минимальные значения высотных характеристик рельефа показатели (S_y) – менее 7 нм и значения асимметрии S_{sk} – около 2.5 нм, что соответствует формированию тонкого и достаточно гладкого покрытия на ранних стадиях роста. При 300 циклах наблюдается резкое увеличение этих параметров ($S_a \approx 0.20$ нм и $S_y \approx 11.85$ нм), что указывает на развитие более выраженного рельефа и формирование структур с явными неровностями. Пленка при 400 циклах характеризуется незначительным уменьшением средней шероховатости, возможно, связанным с эффектом сглаживания при увеличении толщины слоя, однако остаются высокими значения асимметрии зерен ($S_{sk} \sim 14$ нм). Максимальные значения параметров S_a и S_y (0.22 нм и 33.62 нм соответственно) наблюдаются при 500 циклах, сопровождаясь значительным ростом среднеквадратичного отклонения (Sq до 0.66 нм) и асимметрии поверхности ($S_{sk} \sim 23$ нм), указывающим на появление выраженных выступов и углублений. Таким образом, наиболее гладкие и стабильные слои Al_2O_3 формируются при 100–200 циклах АСО, тогда как увеличение толщины до 300–500 циклов приводит к развитию текстурированной, более шероховатой поверхности.

На рисунке 6 приведены результаты измерения электрических характеристик пленок: поверхностного сопротивления, удельного сопротивления и сопротивления растекания. Анализ представленных данных показывает, что с увеличением числа циклов осаждения наблюдается рост поверхностного сопротивления и сопротивления растекания. Поскольку оксид алюминия является диэлектриком с широкой запрещённой зоной, увеличение толщины слоя приводит к уменьшению вероятности туннелирования

носителей заряда через плёнку и соответственно к росту её сопротивления и уменьшению токов утечки. Значения поверхностного сопротивления пленок увеличиваются в зависимости от количества циклов осаждения: от ~ 3.5 × 10^3 Ом/(100 циклов) до ~ 2.9 × 10^4 Ом/(500 циклов). Аналогично сопротивление растекания и удельное сопротивление растут примерно от 820 до 6700 Ом и от 0,35 до 3 Ом·см соответственно.

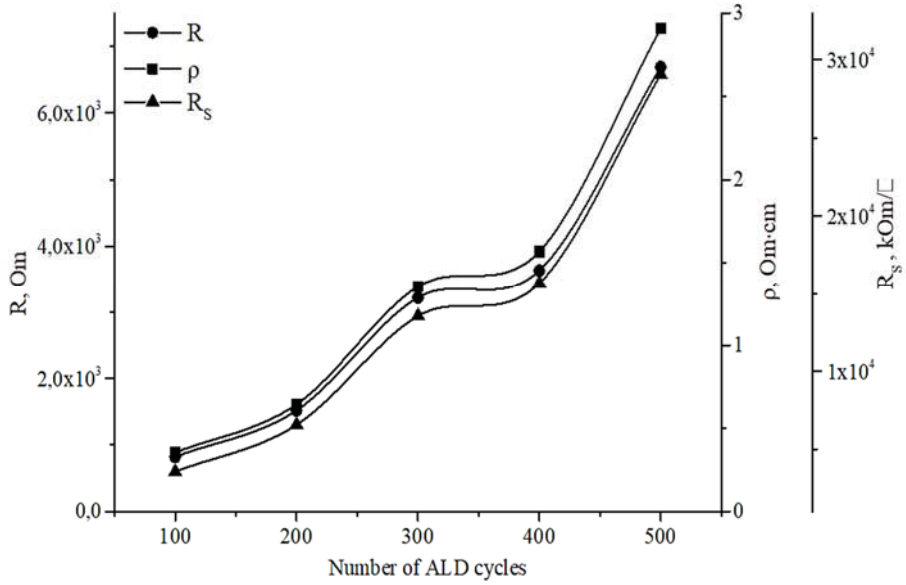


Рис. 6. Зависимости сопротивлений: поверхностного, удельного и растекания от количества циклов осаждения пленок

Эти результаты подтверждают, что при увеличении числа циклов формируется более плотный сплошной слой оксида алюминия, который эффективно изолирует подложку от токопроводящей среды и снижает ток утечки.

Заключение

В процессе исследований были выращены несколько серий пленок с аморфной структурой на основе Al_2O_3 с различной толщиной на подложке Si методом АСО. Проведены комплексные исследования структурных и электрических характеристик пленок. Было выявлено, что средний прирост толщины за один цикл составляет около 0.115 нм/цикл. Максимальные значения шероховатости и значения высотных характеристик рельефа наблюдаются при 500 циклах ($S_y \approx 33{,}62$ нм, $S_a \approx 0{,}22$ нм). Установлено, что с увеличением числа циклов осаждения наблюдается рост поверхностного сопротивления и сопротивления растекания.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (государственное задание FZNZ-2025-0003).

Литература

1. Barbos, C. Characterization of Al_2O_3 thin films prepared by thermal ALD / C. Barbos, D. Blanc-Pélissier, A. Favé, E. Blanquet, A. Crisci, E. Fourmond, D. Albertini, A. Sabac, K. Ayadi, P. Girard, M. Lemiti // Energy Procedia. 2015. Vol. 77. – Pp. 558–564.

2. Lien, S. Y. Investigation on the passivated Si/Al_2O_3 interface fabricated by non-vacuum spatial atomic layer deposition system / S.-Y. Lien, C.-H. Yang, K.-C. Wu, C.-Y. Kung // Nanoscale Research Letters. 2015. Vol. 10, no. 1. P. – 93.

3. Zhao, Y. Passivation mechanism of thermal atomic layer-deposited Al_2O_3 films on silicon at different annealing temperatures / Y. Zhao, C. Zhou, X. Zhang, P. Zhang, Y. Dou, W. Wang, X. Cao, B. Wang, Y. Tang, S. Zhou // Nanoscale Research Letters. 2013. Vol. 8, no. 1. – P. 114.

4. Otto, M. Extremely low surface recombination velocities in black silicon passivated by atomic layer deposition / M. Otto, M. Kröll, T. Käsebier, R. Salzer, A. Tünnermann, R. B. Wehrspohn // Applied Physics Letters. 2012. Vol. 100. – P. 191603.

5. Groner, M. D. Low-temperature Al_2O_3 atomic layer deposition / M. D. Groner, F. H. Fabreguette, J. W. Elam, S. M. George // Chemistry of Materials. 2004. Vol. 16. – Pp. 639–645.

6. Dsouza, N. Silicon surface passivation of industrial n-type CZ Si (111) by Al_2O_3 layers deposited by thermal ALD process for application in carrier selective contact solar cells / N. Dsouza, A. K. Singh, R. Maurya, R. Kanakala, R. Madaka, N. Bandaru, Md. S. Uddin, J. K. Rath // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. 2023. Vol. 34, no. 14. – P. 1179.

7. Iatsunskyi, I. Structural and XPS characterization of ALD Al_2O_3 coated porous silicon / I. Iatsunskyi, M. Kempiński, M. Jancelewicz, K. Załęski, S. Jurga, V. Smyntyna // Vacuum. 2015. Vol. 113. – Pp. 52–58.

8. Wang, W.-C. Surface passivation of efficient nanotextured black silicon solar cells using thermal atomic layer deposition / W.-C. Wang, C.-W. Lin, H.-J. Chen, C.-W. Chang, J.-J. Huang, M.-J. Yang, B. Tjahjono, J.-J. Huang, W.-C. Hsu, M.-J. Chen // ACS Applied Materials & Interfaces. 2013. Vol. 5. – Pp. 9752–9759.

9. Werner, F. Silicon surface passivation by Al_2O_3: recombination parameters and inversion layer solar cells / F. Werner, A. Cosceev, J. Schmidt // Energy Procedia. 2012. Vol. 27. – Pp. 319–324.

10. Salem, M. Novel silicon surface passivation by porous silicon combined with an ultrathin Al_2O_3 film / M. Salem, M. Ben Rabha, B. Bessais, M. A. El Khakani, M. Gaidi // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. 2013. Vol. 24. – Pp. 5035–5039.

11. Rabha, M. B. Monocrystalline silicon surface passivation by Al_2O_3/porous silicon combined treatment / M. B. Rabha, M. Salem, M. A. El Khakani, B. Bessais, M. Gaidi // Materials Science and Engineering B. 2013. Vol. 178. – Pp. 695–697.

12. Bullock, J. Passivation of aluminium–n^+ silicon contacts for solar cells by ultrathin Al_2O_3 and SiO_2 dielectric layers / J. Bullock, D. Yan, A. Cuevas // Physica Status Solidi (RRL). – 2013. Vol. 7. – P. 1–4.

13. Bjormander, C. CVD deposition and characterization of coloured Al_2O_3/ZrO_2 multilayers / C. Bjormander // Surface and Coatings Technology. 2006. Vol. 201, no. 7. – Pp. 4032–4036.

14. Angarita, G. Synthesis of alumina thin films using reactive magnetron sputtering method / G. Angarita, C. Palacio, M. Trujillo, M. Arroyave // Journal of Physics: Conference Series. 2017. Vol. 850, no. 1. – P. 012022.

15. Hu, B. Optical properties of amorphous Al_2O_3 thin films prepared by a sol–gel process / B. Hu, M. Yao, R. Xiao, J. Chen, X. Yao // Ceramics International. 2014. Vol. 40, no. 9. – Pp. 14133–14139.

16. Cibert, C. Properties of aluminum oxide thin films deposited by pulsed laser deposition and plasma enhanced chemical vapor deposition / C. Cibert, H. Hidalgo, C. Champeaux, P. Tristant, C. Tixier, J. Desmaison, A. Catherinot // Thin Solid Films. 2008. Vol. 516, no. 6. – Pp. 1290–1296.

17. Shi, S. Structural and optical properties of amorphous Al_2O_3 thin film deposited by atomic layer deposition / S. Shi, S. Qian, X. Hou, J. Mu, J. He, X. Chou // Advances in Condensed Matter Physics. 2018. Vol. 2018, no. 1. – P. 7598978.

18. Johnson, R. W. A brief review of atomic layer deposition: from fundamentals to applications / R. W. Johnson, A. Hultqvist, S. F. Bent // Materials today. 2014. Vol. 17, no. 5. – Pp. 236–246.

19. Leskelä, M. Novel materials by atomic layer deposition and molecular layer deposition / M. Leskelä, M. Ritala, O. Nilsen // MRS bulletin. 2011. Vol. 36, no. 11. – Pp. 877–884.

20. George, S. M. Atomic layer deposition: an overview / S. M. George // Chemical reviews. 2010. Vol. 110, no. 1. – Pp. 111–131.

21. Elam, J. W. Properties of ZnO/Al_2O_3 alloy films grown using atomic layer deposition techniques / J. W. Elam, D. Routkevitch, S. M. George // Journal of the Electrochemical Society. 2003. Vol. 150, no. 6. – P. 339.

22. Sneh, O. Thin film atomic layer deposition equipment for semiconductor processing / O. Sneh, R. B. Clark-Phelps, A. R. Londergan, J. Winkler, T. E. Seidel // Thin solid films. 2002. Vol. 402, no. 1-2. – Pp. 248–261.

23. Groner, M. D. Gas diffusion barriers on polymers using Al_2O_3 atomic layer deposition / M. D. Groner, S. M.George, R. S. McLean, P. F. Carcia // Applied Physics Letters. 2006. Vol. 88, no.5. – C. 051907.

Поступила в редакцию 27 ноября 2025 г.
Принята 10 декабря 2025 г.

UDC 539.23

DOI: 10.21779/2542-0321-2025-40-4-18–28

Thin Films based on Al_2O_3 Obtained by Atomic Layer Deposition: Formation, Structural and Electrical Properties

Sh. P. Faradjev, M. Kh. Rabadanov, A. E. Rabadanova, S. Kh. Gadzhimagomedov, D. K. Palchaev, I. M. Abdullagatov, Zh. Kh. Murlieva, N. M.-R. Alikhanov

Dagestan State University; Russia, 367000, Makhachkala, M. Gadzhiev st., 43a; faradzhev22@mail.ru

Abstract. Amorphous Al_2O_3-based films of various thicknesses were grown on Si substrates using atomic layer deposition (ALD) with trimethylaluminum (TMA) and water (H_2O) as precursors at 180 °C. Several series of films corresponding to 100, 200, 300, 400, and 500 deposition cycles were fabricated. It was shown that the thickness of the deposited layer increases linearly with the number of ALD cycles. The average growth per cycle was approximately 0.115 nm/cycle. The comprehensive studies of the structural and electrical properties of the films were carried out. It was demonstrated that the smoothest and most stable layers are formed at 100–200 cycles, while at 300–500 cycles a more textured and roughened surface develops. It was found that an increase in the number of deposition cycles leads to an increase in surface resistance and spreading resistance.

Keywords: thin films, aluminum oxide, atomic layer deposition, nanotechnology.

Received November 27, 2025
Accepted December 10, 2025