

## Исследование анизотропии структурных свойств слоев (0001)GaN, выращенных методом МОГФЭ на $a$ -срезе сапфира (11 $\bar{2}$ 0)

© П.А. Юнин<sup>1,2</sup>, Ю.Н. Дроздов<sup>1</sup>, О.И. Хрыкин<sup>1</sup>, В.А. Григорьев<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 ГСП-105, Нижний Новгород, Россия

<sup>2</sup> Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: yunin@ipmras.ru

(Получена 25 апреля 2018 г. Принята к печати 7 мая 2018 г.)

Методом рентгеновской дифрактометрии исследованы структурные свойства гетероэпитаксиальных слоев (0001)GaN, выращенных методом МОГФЭ на подложках  $a$ -среза (11 $\bar{2}$ 0) сапфира. Обнаружена анизотропия ширины кривых качания симметричного (0004) и асимметричных {11 $\bar{2}$ 4} и {10 $\bar{1}$ 5} отражений нитрида галлия при вращении образца в своей плоскости. Сравнение анизотропии ширины кривых качания для слоев (0001)GaN/(11 $\bar{2}$ 0)Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> с двумя различными вариантами ориентационных соотношений в плоскости позволило сделать заключение о независимости характера анизотропии структурных свойств от термоупругих напряжений, возникающих при остывании гетеросистемы.

DOI: 10.21883/FTP.2018.11.46587.09

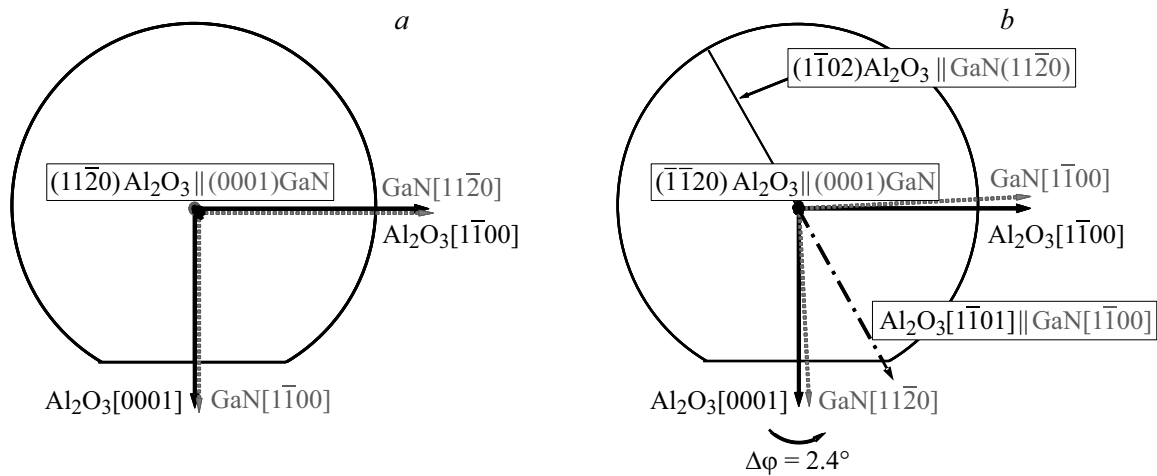
### 1. Введение

Из-за совокупности физических свойств сапфир остается наиболее распространенной подложкой для гетероэпитаксии нитридов третьей группы. Известно, что слои GaN, AlN и InN ориентации (0001) растут не только на традиционных подложках сапфира  $c$ -среза (0001), но также и на подложках Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  $a$ -среза (11 $\bar{2}$ 0) [1–10]. В зависимости от метода и условий роста могут реализовываться различные ориентационные соотношения в плоскости роста между слоем и подложкой [2,4,6,11,12]. Новый вариант эпитаксиальных соотношений был зарегистрирован нами ранее [13]. Механизмы эпитаксии слоев нитридов на подложках  $a$ -среза сапфира до сих пор исследованы недостаточно полно. Известно, что в слоях нитридов ориентации (0001), выращенных на  $a$ -срезе сапфира (11 $\bar{2}$ 0), возникает анизотропная деформация гетеросистемы [6,14,15]. Также в экспериментах наблюдалась анизотропия структурных свойств слоев нитридов, выращенных на  $a$ -срезе сапфира [15], однако остаются невыясненными вопросы связи анизотропии структурных свойств с упругими напряжениями в слое. Авторы работы [15] пытались объяснить уширение дифракционных кривых качания анизотропным изгибом подложки из-за деформации гетеросистемы при остывании, однако они не смогли количественно описать экспериментальные данные, основываясь на этом предположении. Для решения этого вопроса необходимо проанализировать слои с различными ориентационными соотношениями в плоскости подложки. В данной работе методом рентгеновской дифрактометрии исследуются структурные свойства слоев (0001)GaN с двумя разными вариантами ориентационных соотношений в плоскости, выращенные методом металлоорганической газофазной эпитаксии (МОГФЭ) на подложках  $a$ -среза сапфира (11 $\bar{2}$ 0).

### 2. Эксперимент

Рост слоев GaN осуществлялся в оригинальной установке металлоорганической газофазной эпитаксии (МОГФЭ) пониженного давления [16]. В качестве подложек использовались двухдюймовые пластины сапфира с ориентацией  $a$ -плоскости (11 $\bar{2}$ 0) или ( $\bar{1}$ 1 $\bar{2}$ 0) параллельно поверхности пластины [17], базовый срез был сделан параллельно плоскости  $c$  (0001) (производство ООО „Монокристалл“, г. Ставрополь, Россия). Исследование ориентированных соотношений и структурных свойств слоев GaN проводилось методом рентгеновской дифрактометрии (РД, дифрактометр Bruker D8 Discover). Съемка осуществлялась в схеме высокого разрешения с монохроматором двукратного отражения Ge(220) на первичном пучке, излучение CuK<sub>α1</sub>. В эксперименте регистрировались кривые качания (КК) дифракционных отражений {11 $\bar{2}$ 4} и {10 $\bar{1}$ 5} слоев GaN. Кроме того, измерялась ширина кривой качания отражения (0004) GaN при разных углах  $\varphi$  поворота образца в своей плоскости.

В данной работе рассматриваются результаты, полученные для двух слоев (0001)GaN с разными ориентационными соотношениями в плоскости на подложке  $a$ -среза сапфира (11 $\bar{2}$ 0). Образцы S1 и S2 были получены при следующих условиях. Для образца S1 предростовой отжиг подложки в водороде проводился при 1100°C. Затем в течение 135 секунд осаждался зародышевый слой GaN при температуре 550°C. Температура подложки была увеличена до 1050°C и при постоянном потоке триметилгаллия осуществлен рост слоя GaN толщиной 1 мкм. В образце S2 температура предростового отжига подложки в водороде была снижена до 1000°C. Время осаждения зародышевого слоя GaN при 550°C составило 65 секунд. Затем температура подложки была увеличена до 1050°C, а рост слоя GaN толщиной 2 мкм осуществлялся со ступенчатым увеличением потока тримети-



**Рис. 1.** Ориентационные соотношения в плоскости для слоев GaN(0001) на пластинах *a*-среза сапфира: *a* — образец S1, *b* — образец S2.

лгаллия на начальном этапе. Нитридизация подложки в обоих случаях не проводилась.

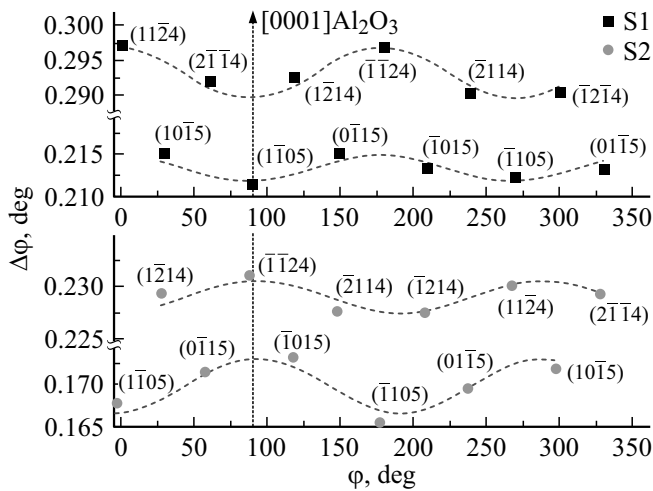
### 3. Результаты и обсуждение

Известно, что при росте слоев нитридов третьей группы на подложках *a*-среза сапфира в зависимости от начальных условий роста могут реализовываться различные ориентационные соотношения в плоскости роста. Влияние всех возможностей изменения ростовых параметров на реализацию того или иного варианта ориентационных соотношений к настоящему времени полностью не исследовано. В недавних работах для слоев AlN, выращенных методом МОГФЭ, достоверно установлена связь ориентационных соотношений с параметрами нитридизации подложки сапфира [11]. В ходе наших экспериментов были получены слои GaN на *a*-срезе сапфира с различными ориентационными соотношениями в плоскости при различных начальных условиях роста. Исследуемые в рамках данной работы образцы S1 и S2 различаются между собой толщиной и способом формирования низкотемпературного зародышевого слоя GaN. Слои GaN в образцах S1 и S2 имеют разную толщину, что делает некорректным количественное сравнение структурных характеристик. Однако такие характеристики, как ориентационные соотношения и характер анизотропии структурных свойств, обычно не зависят от толщины слоя, поскольку формируются на начальном этапе роста. В качестве параметра, характеризующего структурное совершенство слоев GaN, использована ширина РД кривой качания, которая обычно используется как интегральная характеристика совершенства мозаичного монокристалла [18]. Анализ дифракционного отражения GaN(0004) показал, что в обоих образцах плоскость (0001) слоя GaN параллельна поверхности подложки (11 $\bar{2}$ 0) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, что согласуется с литературными

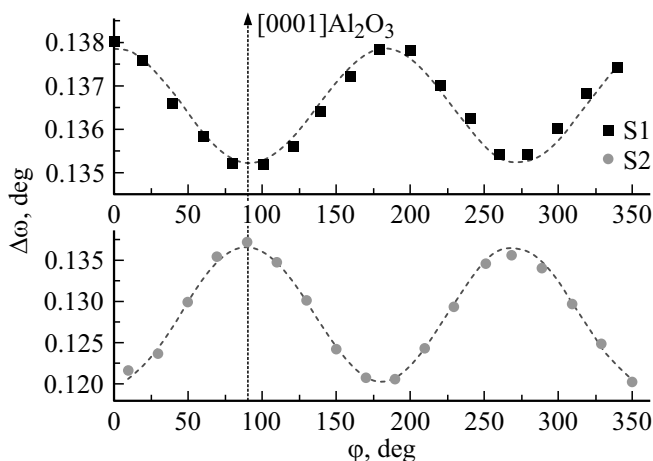
данными. Анализ угловых положений отражений от наклонных плоскостей (11 $\bar{2}$ 4) GaN и (11 $\bar{2}$ 3) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> для образца S1 показал, что реализуются соотношения GaN(0001), [1 $\bar{1}$ 00] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (11 $\bar{2}$ 0), [0001] (см. рис. 1, *a*). В литературе можно встретить также и эквивалентные записи этого варианта ориентационных соотношений для направлений в плоскости: GaN [1 $\bar{1}$ 00] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [0001] либо GaN [11 $\bar{2}$ 0] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [1 $\bar{1}$ 00] либо *m*-плоскость GaN || *c*-плоскости Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, либо *a*-плоскость GaN || *m*-плоскости Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Для образца S2 реализуется определенный нами ранее вариант ориентационных соотношений для плоскостей, перпендикулярных поверхности [13]: (11 $\bar{2}$ 0)GaN || (1 $\bar{1}$ 02)Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, что эквивалентно GaN [1 $\bar{1}$ 00] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [1 $\bar{1}$ 01], или *a*-плоскость GaN || *r*-плоскости Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (см. рис. 1, *b*). Возможно, что обнаруженные нами соотношения в плоскости это уточненный с учетом разворота на 2.4° вариант соотношений, которые в литературе известны как (11 $\bar{2}$ 0) GaN || (0001) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Эквивалентные записи для этого варианта в литературе: GaN [11 $\bar{2}$ 0] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [0001] или GaN [1 $\bar{1}$ 00] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [1 $\bar{1}$ 00], или GaN [11 $\bar{2}$ 0] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [0001], или GaN [1 $\bar{1}$ 00] || Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [1 $\bar{1}$ 00], или *a*-плоскость GaN || *c*-плоскости Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; или *m*-плоскость GaN || *m*-плоскости Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Таким образом, подтверждено, что одним методом МОГФЭ можно получать слои GaN на *a*-срезе сапфира с различными ориентационными соотношениями в плоскости. Ориентационные соотношения в нашем случае определяются, по-видимому, условиями начальной стадии роста зародышевого слоя.

Наличие слоев с различной ориентацией относительно подложки позволило проанализировать связь анизотропии свойств слоя GaN с анизотропией термоупругой деформации. На рис. 2 представлены результаты измерения ширины кривых качания „наклонных“ отражений {11 $\bar{2}$ 4} и {10 $\bar{1}$ 5} GaN для образцов S1 и S2. Стрелкой на рисунке отмечен угол  $\varphi = 90^\circ$ , соответствующий



**Рис. 2.** Ширина РД кривых качания для двух наборов дифракционных отражений  $\{11\bar{2}4\}$  и  $\{10\bar{1}5\}$  GaN образцов S1 и S2,  $\varphi$  — угол поворота образца в своей плоскости. Стрелкой на рисунке помечен угол  $\varphi = 90^\circ$ , соответствующий направлению  $[0001]$  подложки сапфира.



**Рис. 3.** Ширина РД кривой качания отражения  $(0004)$  GaN для образцов S1 и S2 в зависимости от поворота образца  $\varphi$  в своей плоскости.

направлению  $[0001]$  подложки сапфира в плоскости образца.

На рис. 2 показана анизотропия структурных свойств слоев GaN в обоих образцах. Явно видна периодическая зависимость ширины КК от угла поворота образца в плоскости для обоих слоев. Различие состоит в том, что минимум ширины КК для образца S1 соответствует положению нормали  $[0001]$  к  $c$ -плоскости подложки (плоскости базового среза), в то время как для образца S2 этому углу соответствует максимум. Главные оси термоупругой деформации определяются анизотропией коэффициентов термического расширения в плоскости  $(11\bar{2}0)$   $a$ -среза сапфира, их положение одинаково по углу  $\varphi$  для S1 и S2. Направление максимального сжатия слоя GaN соответствует направлению

$[0001]$  в плоскости подложки сапфира и на рис. 2 соответствует углу  $\varphi = 90^\circ$ . Гипотеза о термоупругом характере деформации слоя GaN количественно подтверждена в [19]. Наблюдаемый максимум ширины РД КК на рис. 2 соответствует направлению  $[11\bar{2}0]$  GaN в плоскости для обоих образцов. Наблюдаемое различие характера анизотропии ширины КК для образцов S1 и S2 позволяет сделать заключение, что анизотропия структурных свойств не связана с деформацией слоя во время остывания, а привязана к кристаллографической ориентации слоя. По всей видимости, анизотропия структурных свойств напрямую зависит от ориентационных соотношений в плоскости слой-подложка, а значит, возникает еще в процессе роста слоя при высокой температуре.

Также было проведено исследование зависимости ширины КК симметричного отражения  $(0004)$  GaN от угла поворота образца в плоскости (см. рис. 3). Видно, что характер анизотропии аналогичен приведенному на рис. 2. Для образца S1 направление  $[0001]$  подложки соответствует минимуму ширины кривой качания, а для образца S2 — максимуму. Известно, что в случае симметричного отражения ширина КК почти целиком определяется наклоном блоков мозаики, параметр „tilt“, в то время как в ширину КК для наклонных плоскостей в геометрии некопланарной симметричной съемки основной вклад вносит разворот блоков в плоскости, параметр „twist“ [20]. Согласованная вариация ширины КК симметричного и наклонного отражений, которая видна из сравнения рис. 2 и 3, позволяет сделать вывод, что обе компоненты разориентации (наклон и разворот) блоков мозаики не связаны с деформацией слоя во время остывания.

#### 4. Заключение

В работе показана возможность получения методом МОГФЭ слоев  $(0001)$  GaN на подложке  $a$ -среза сапфира  $(11\bar{2}0)$  с различными ориентационными соотношениями в плоскости роста. Ориентационные соотношения определяются, в частности, условиями начальной стадии роста зародышевого слоя. Показано, что анизотропия структурных свойств слоев GaN, — как наклон, так и разворот блоков мозаики, — не зависит от термоупругой деформации слоя, а определяется ориентационными соотношениями в плоскости слой-подложка. Сделано предположение, что анизотропия структурных свойств связана с механизмом эпитаксии  $(0001)$  GaN/ $(11\bar{2}0)$   $\text{Al}_2\text{O}_3$  и возникает еще в процессе роста слоя при высокой температуре.

Работа поддержана грантом РНФ, проект № 17-72-10166. Использовано оборудование центра коллективного пользования „Физика и технология микро- и наноструктур“.

## Список литературы

- [1] T. Lei, K.F. Ludwig, T.D. Moustakas. *J. Appl. Phys.*, **74**, 4430 (1993).
- [2] D. Doppalapudi, E. Pliopoulos, S.N. Basu, T.D. Moustakas, *J. Appl. Phys.*, **85**, 3582 (1999).
- [3] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto. *Japanese J. Appl. Phys.*, pt. 2 Letters, **35**, L217 (1996).
- [4] J. Bai, T. Wang, H.D. Li, N. Jiang, S. Sakai. *J. Cryst. Growth*, **231**, 41 (2001).
- [5] M.E. Twigg, R.L. Henry, A.E. Wickenden, D.D. Koleske, J.C. Culbertson. *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 686 (1999).
- [6] J. Wu, K. Okuura, H. Miyake, K. Hiramatsu. *Appl. Phys. Express*, **2**, 111004 (2009).
- [7] T. Someya, K. Hoshino, Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 1992 (2001).
- [8] M. Moret, S. Ruffenach, O. Briot, B. Gil. *Physica Status Solidi A*, **208**, 1183 (2011).
- [9] M. Moret, S. Ruffenach, O. Briot, B. Gil. *Phys. Status Solidi A*, **207**, 24 (2010).
- [10] Y.N. Buzynin, O.I. Khrykin, P.A. Yunin, M.N. Drozdov, A.Y. Luk'yanov. *Phys. Status Solidi A*, **215**, 1700919 (2018).
- [11] M. Funato, M. Shibaoka, Y. Kawakami. *J. Appl. Phys.*, **121**, 085304 (2017).
- [12] J. Tajima, R. Togashi, H. Murakami, Y. Kumagai, K. Takada, A. Koukitu. *Phys. Status Solidi C*, **8**, 2028 (2011).
- [13] П.А. Юнин, Ю.Н. Дроздов, О.И. Хрыкин. *Тр. XXI Международн. симп. Нанозфизика и нанозлектроника 2017* (Нижний Новгород, Россия 2017) т. 2, с. 780.
- [14] V. Darakchieva, P.P. Paskov, T. Paskova, E. Valcheva, B. Monemar, M. Heuken. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 703 (2003).
- [15] H. Kim-Chauveau, P. De Mierry, H. Cabane, D. Gindhart. *J. Appl. Phys.*, **104**, 113516 (2008).
- [16] О.И. Хрыкин, А.В. Бутин, Д.М. Гапонова, В.М. Данильцев, М.Н. Дроздов, Ю.Н. Дроздов, А.В. Мурель, В.И. Шашкин. *ФТП*, **39**, 21 (2005).
- [17] P.A. Yunin, Y.N. Drozdov. *J. Appl. Cryst.*, **51** (2), 549 (2018).
- [18] D.K. Bowen, В.К. Tanner. *High resolution X-Ray diffractometry and topography* (London, Taylor & Francis, 2005).
- [19] Ю.Н. Дроздов, О.И. Хрыкин, П.А. Юнин. *Тр. XXII Международн. симп. Нанозфизика и нанозлектроника 2018*, (Нижний Новгород, Россия, 2018) т. 2, с. 596.
- [20] M.A. Moram, M.E. Vickers. *Rep. Prog. Phys.*, **72**, 036502 (2009).

Редактор А.Н. Смирнов

### Investigation of the anisotropy of the structural properties of GaN (0001) layers grown by the MOVPE on *a*-plane (11 $\bar{2}$ 0) sapphire

P.A. Yunin<sup>1,2</sup>, Yu.N. Drozdov<sup>1</sup>, O.I. Khrykin<sup>1</sup>, V.A. Grigoryev<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

<sup>2</sup> Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** X-ray diffractometry was used to study the structural properties of (0001)GaN heteroepitaxial layers grown by MOCVD on *a*-plane (11 $\bar{2}$ 0) sapphire substrates. Anisotropy of the rocking curve width for symmetric (0004) and asymmetric {11 $\bar{2}$ 4} and {10 $\bar{1}$ 5} reflections of gallium nitride is observed. The difference in the anisotropy of the rocking curve width for the (0001) GaN layers on the *a*-plane (11 $\bar{2}$ 0) sapphire with two different variants of in-plane orientation relationships is shown. It allows making an assumption that the anisotropy of structural properties is independent of thermoelastic stress that arise during the cooling of heterosystem.