

Проверка гипотезы о термоупругом характере деформации слоя (0001)GaN, выращенного на *a*-срезе сапфира

© Ю.Н. Дроздов¹, О.И. Хрыкин¹, П.А. Юнин^{1,2}

¹ Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 ГСП-105, Нижний Новгород, Россия

² Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: drozduy@ipmras.ru

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

Методом рентгеновской дифрактометрии исследована деформация эпитаксиального слоя (0001)GaN на *a*-срезе (11 $\bar{2}$ 0) сапфира. По литературным данным о коэффициентах температурного расширения нитрида галлия и сапфира вычислена анизотропная деформация слоя. Сравнение вычисленной и экспериментальной деформации подтверждает гипотезу о термоупругом характере деформации GaN на *a*-срезе сапфира. Этот результат позволяет, в частности, проводить теоретические оценки упругой деформации и пьезополя в псевдоморфных гетероструктурах, использующих слои GaN на *a*-срезе сапфира в качестве виртуальной подложки или буферного слоя.

DOI: 10.21883/FTP.2018.11.46602.24

1. Введение

Одним из важных вопросов для современных нитридных технологий является природа и величина остаточных упругих напряжений в слоях, что связано с сильным пьезоэффектом в кристаллах гексагональных нитридов [1]. Необходимо уметь рассчитывать упругую деформацию в слоях применительно к конкретным гетеросистемам. Ранее было установлено [2–6], что на *a*-срезе сапфира в условиях газофазной эпитаксии формируются слои гексагональной фазы GaN или AlN с осью *c* по нормали к поверхности, *c*-ориентация. Анизотропия *a*-среза сапфира должна при этом сказываться на свойствах слоев, в частности, это относится к термической деформации. Термические коэффициенты расширения слоя и подложки заметно различаются, а разность температур роста и измерения составляет более 1000°C. Деформация будет анизотропной, так как на пластине *a*-среза сапфира (11 $\bar{2}$ 0) термические коэффициенты различны в направлениях осей *a* и *c*. Анизотропия деформации действительно наблюдалась для слоев, имеющих различные ориентации в плоскости сопряжения [2–5]. В нашей работе [6] выявлен новый тип сопряжения слоя и подложки в системе (0001)GaN || (11 $\bar{2}$ 0)Al₂O₃, поэтому представлялось интересным экспериментально проверить гипотезу о термоупругом характере деформации слоя при таком сопряжении, проанализировав как качественные, так и количественные особенности деформации.

2. Метод расчета

Известны данные недавних прецизионных измерений коэффициентов термического расширения (КТР) для

сапфира [7] и нитрида галлия [8], что дает возможность рассчитать термоупругую деформацию слоя. Было показано, что теория Дебая достаточно хорошо описывает изменение периодов решетки этих кристаллов в широком диапазоне температур, и были определены численные коэффициенты. На рис. 1 приведен вид температурных зависимостей для КТР.

Оба кристалла относятся к гексагональной сингонии, их свойства в плоскости (0001) изотропны. Видно, что КТР сапфира превышают КТР GaN в плоскости (0001), поэтому при охлаждении слой GaN должен быть сжат, и это сжатие анизотропно, так как в плоскости *a*-среза вдоль ортогональных осей сапфира КТР существенно различаются.

Для температурной зависимости периодов решетки сапфира (*a_S*, *c_S*) и нитрида галлия (*a_{GaN}*) в работах [7,8]

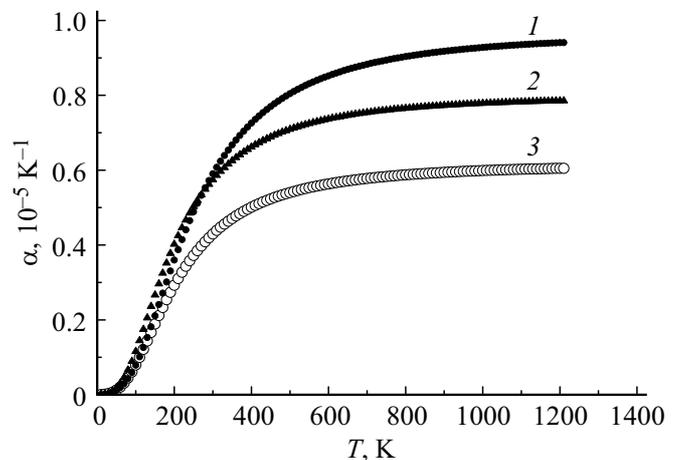


Рис. 1. Коэффициенты термического расширения α по данным работ [7,8]: 1 — вдоль оси *a* сапфира, 2 — вдоль оси *c* сапфира, 3 — по любому направлению в плоскости (0001)GaN.

были получены аппроксимирующие выражения (в Å):

$$a_S = 4.755 + 3.852 \cdot 10^{-5} \cdot T_{Da} f_D(T_{Da}/T), \quad (1)$$

$$c_S = 12.98 + 12.768 \cdot 10^{-5} \cdot T_{Dc} f_D(T_{Dc}/T), \quad (2)$$

$$a_{GaN} = 3.188 + 1.99 \cdot 10^{-5} \cdot T_D f_D(T_D/T), \quad (3)$$

где T — температура по абсолютной шкале, f_D — функция Дебая, T_{Da} — температура Дебая для сапфира по оси a (829 К), T_{Dc} — температура Дебая для сапфира по оси c (1030 К), T_D — температура Дебая для GaN в плоскости, перпендикулярной оси c (868 К).

Термическую деформацию кристалла при изменении температуры от T_1 до T_2 можно рассчитать, интегрируя КТР, либо непосредственно:

$$e_{\Delta T} = [a(T_2) - a(T_1)]/a(T_2). \quad (4)$$

Так как нас интересует деформация решетки при температуре измерения, то в знаменателе стоит период решетки при комнатной температуре, в отличие от формулы с интегралом от КТР по температурному интервалу. Деформация слоя, жестко скрепленного с подложкой, будет равна разности деформаций подложки и слоя для соответствующего направления:

$$e_{GaN} = e_{\Delta T_S} - e_{\Delta T_{GaN}}. \quad (5)$$

Взаимные кристаллографические направления подложки и слоя по данным [6] показаны на рис. 2.

Введем вспомогательные оси x и y вдоль осей $[0001]$ и $[\bar{1}100]$ подложки соответственно (см. рис. 2). Исходя из симметрии задачи можно заключить, что независимо от поворота слоя в плоскости (0001) оси x и y будут главными осями деформации, углы между которыми не изменятся (90°). При охлаждении от 1100 до 25°C , используя (1)–(5), получаем деформацию слоя вдоль оси x , $e_{11} = -3.155 \cdot 10^{-3}$, и вдоль оси y , $e_{22} = -1.889 \cdot 10^{-3}$. Деформация слоя GaN вдоль направления $[0001]$ подложки будет максимальной из-за наибольшей разницы соответствующих КТР. В направлении по нормали к гетеропереходу (ось z слоя) деформация e_{33} рассчитывается из граничного условия, что упругие напряжения на поверхности равны нулю. Результирующее выражение:

$$e_{33} = -(e_{11} + e_{22})C_{13}/C_{33},$$

где C_{13} и C_{33} — упругие модули кристалла GaN. При значениях $C_{13} = 103$ ГПа, $C_{33} = 405$ ГПа [1] получаем $e_{33} = 1.283 \cdot 10^{-3}$.

Анизотропия деформации GaN приведет к тому, что межплоскостные расстояния для семейства наклонных и симметрично-эквивалентных в исходном недеформированном кристалле плоскостей начнут различаться. В эксперименте это будет выражаться в различии в брегговских углах дифракции для плоскостей из одного семейства. Поскольку деформация привязана к осям подложки, расчет можно провести независимо от ориентации слоя. По известному тензору e_{ij} можно

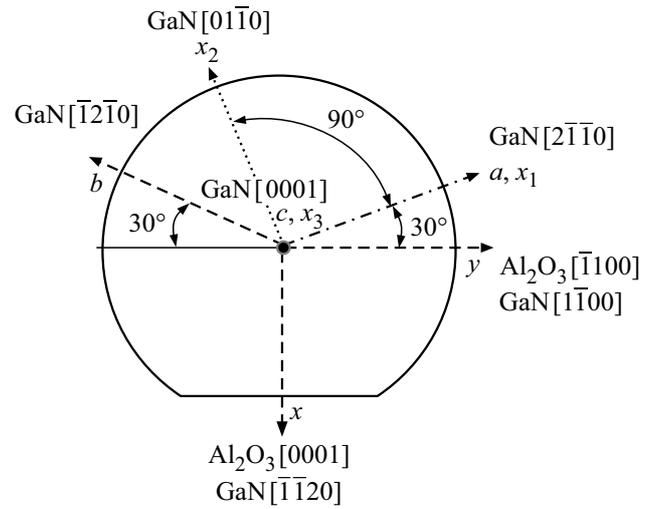


Рис. 2. Схематично показана пластина-подложка a-среза сапфира с боковым срезом по плоскости (0001). Показаны кристаллографические (a, b, c), кристаллофизические (x1, x2, x3) оси слоя GaN и вспомогательные оси x и y.

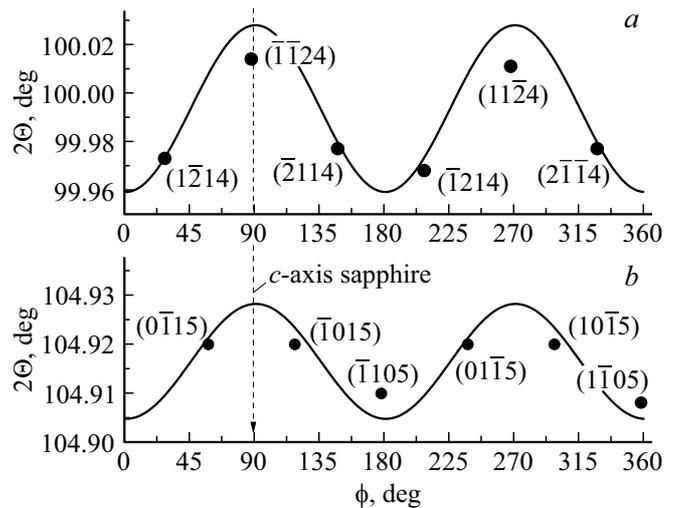


Рис. 3. Экспериментальные (точки) и вычисленные (линии) значения брегговских углов 2θ для двух систем плоскостей, наклоненных к (0001) на 39.1° (a) и 20.6° (b).

вычислить деформацию в направлении по нормали к плоскости (hkl). Обозначим это направление единичным вектором $\mathbf{r}(r_1, r_2, r_3)$, который можно задать через угол его наклона к оси z (угол ρ) и угол поворота в плоскости поверхности, угол φ :

$$r_1 = \sin(\rho) \cdot \sin(\varphi), \quad r_2 = \sin(\rho) \cdot \cos(\varphi), \quad r_3 = \cos(\rho).$$

Деформация в этом направлении:

$$e(\mathbf{r}) = e_{ij}r_i r_j.$$

Сдвиг брегговского угла относительно недеформированного состояния:

$$\Delta\theta = -e(\mathbf{r}) \operatorname{tg}(\theta).$$

На рис. 3 представлены рассчитанные значения брегговских углов 2θ для двух семейств плоскостей, наклоненных к (0001) соответственно на 39.1 (а) и 20.6° (b) при непрерывно изменяющемся угле поворота слоя относительно подложки в плоскости сопряжения. За начало координат принято направление в подложке $[\bar{1}100]$, ось y на рис. 2.

3. Эксперимент

Измерения выполнены на дифрактометре Bruker D8 Discover, излучение $\text{CuK}\alpha_1$, параболическое зеркало Гёбеля и монохроматор $2 \times \text{Ge}(220)$ на первичном пучке. Для прецизионного измерения углов 2θ использовалась схема съемки с кристаллом-анализатором трехкратного отражения $\text{Ge}(220)$ перед детектором. Подробности методики эксперимента приведены в работе [9]. В эксперименте измерялись брегговские углы двух семейств плоскостей, наклоненных к (0001) соответственно на 39.1 и 20.6° . Результаты представлены в виде точек на рис. 3, там же указаны индексы отражений, которые соответствуют эпитаксиальным соотношениям слоя и подложки, показанным на рис. 2. Вероятные погрешности оценены в ходе отдельного эксперимента для слоя GaN на c -сапфире, где углы не зависели от φ при среднеквадратичном отклонении для эквивалентных отражений $\Delta 2\theta = 0.003^\circ$.

4. Результаты и обсуждение

На рис. 3 показано, что вариация брегговских углов симметрично эквивалентных отражений существенно превышает погрешности эксперимента. Минимальные значения наблюдаются при $\varphi = 0$ и 180° , а максимальные при 90 и 270° , что согласуется с максимальным сжатием слоя вдоль оси c подложки сапфира. Это означает, что по характеру анизотропии деформация слоя соответствует анизотропии деформации подложки в процессе охлаждения. Такой результат можно считать подтверждением гипотезы о термоупругом характере остаточной деформации слоя. Видны некоторые различия в количественных значениях. Одной из причин может являться неточность в значениях периодов решетки GaN в недеформированном слое. В литературе неоднократно сообщалось о вариации периодов слоев GaN, выращенных разными методами, либо с различным уровнем дефектности и легирования (см., например, работу [7]).

Оценим поляризацию в слое GaN, вызванную пьезоэффектом из-за термоупругой деформации гетеросистемы. Запишем уравнение прямого пьезоэлектрического эффекта в матричных обозначениях [10]:

$$P_i = r_{ik} \cdot e_k,$$

где P — вектор поляризации, r_{ik} — тензор пьезоэлектрических коэффициентов в матричном представлении,

$i = 1-3$; $k = 1-6$; e_k — тензор упругой деформации в матричном представлении, $e_1 = e_{11}$, $e_2 = e_{22}$, $e_3 = e_{33}$, остальные три компоненты в осях x, y, z равны нулю. С учетом симметрии матрица r в кристаллофизических осях x_1, x_2, x_3 имеет вид

$$r = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & r_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & r_{15} & 0 & 0 \\ r_{13} & r_{13} & r_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Дополнительный перевод r_{ik} из кристаллофизических осей к выбранным осям x, y, z в данном случае не требуется, поскольку проводится вращением вокруг высокосимметричной оси 6-го порядка. Для вектора P имеем

$$P_1 = 0, \quad P_2 = 0, \quad P_3 = r_{31}(e_1 + e_2) + r_{33}e_3.$$

Используя для GaN значения $r_{31} = -0.49 \text{ К} \cdot \text{м}^{-2}$, $r_{33} = 0.73 \text{ К} \cdot \text{м}^{-2}$ [1], получаем $P_3 \approx 3.4 \cdot 10^{-3} \text{ К} \cdot \text{м}^{-2}$.

В случае использования толстых слоев GaN в качестве „виртуальной“ подложки описанные выше процедуры позволяют заранее проводить оценки упругой деформации и индуцированного деформацией пьезоэлектрического поля в слоях гетеросистемы.

5. Заключение

Таким образом, эксперимент подтверждает, что остаточная деформация слоя (0001)GaN на a -срезах (11 $\bar{2}$ 0) сапфира связана с различием коэффициентов температурного расширения подложки и слоя. Наблюдаемая в эксперименте анизотропия термоупругой деформации хорошо согласуется с рассчитанной. Этот результат позволяет, в частности, проводить теоретические оценки упругой деформации и индуцированной пьезоэффектом поляризации в псевдоморфных гетероструктурах, использующих слой GaN в качестве виртуальной подложки или буфера.

Работа выполнена за счет гранта РФФИ, проект № 17-72-10166. Использовано оборудование центра коллективного пользования „Физика и технология микро- и наноструктур“.

Список литературы

- [1] A.E. Romanov, T.J. Baker, S. Nakamura, J.S. Speck. J. Appl. Phys., **100**, 023522 (2006).
- [2] K. Ueno, E. Kishikawa, S. Inoue, J. Ohta, H. Fujioka, M. Oshima, H. Fukuyama. Phys. Status Solidi RRL, **8** (3), 256 (2014).
- [3] H. Kim-Chauveau, P. De Mierry, H. Cabane, D. Gindhart. J. Appl. Phys., **104**, 113516 (2008).
- [4] V. Darakchieva, P.P. Paskov, T. Paskova, E. Valcheva, B. Monemar, M. Heuken. Appl. Phys. Lett., **82**, 703 (2003).
- [5] J. Bai, T. Wang, H.D. Li, N. Jiang, S. Sakai. J. Cryst. Growth, **231**, 41 (2001).

- [6] П.А. Юнин, Ю.Н. Дроздов, О.И. Хрыкин. *Тр. XXI Междунар. симп. „Нанозфизика и нанозлектроника“* (13–16 марта 2017 г. Нижний Новгород) т. 2, с. 780.
- [7] C. Roder, S. Einfeldt, S. Figge, T. Paskova, D. Hommel, P.P. Paskov, B. Monemar, U. Behn, В.А. Haskell, P.T. Fini, S. Nakamura. *J. Appl. Phys.*, **100**, 103511 (2006).
- [8] C. Roder, S. Einfeldt, S. Figge, D. Hommel. *Phys. Rev. B*, **72**, 085218 (2005).
- [9] Ю.Н. Дроздов, П.А. Юнин. *Поверхность. РСНИ*, **1**, 68 (2016).
- [10] Дж. Най. *Физические свойства кристаллов* (М., Мир, 1967) [Пер. с англ.: J.F. Nye. *Physical properties of crystals* (Oxford University Press, London, 1969)].

Редактор А.Н. Смирнов

Verification of the hypothesis of thermoelastic nature of deformation of (0001) GaN layer grown on *a*-plane sapphire

Yu.N. Drozdov¹, O.I. Khrikin¹, P.A. Yunin^{1,2}

¹ Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
603950 GSP-105, Nizhny Novgorod, Russia

² Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract X-ray diffractometry was used to study the deformation of the epitaxial (0001) GaN layer on *a*-plane (11 $\bar{2}$ 0) sapphire substrate. Using known data on the thermal expansion coefficients of GaN and sapphire, an anisotropic deformation of the layer was calculated. A comparison of the calculated and measured deformation confirms the hypothesis of thermoelastic nature of deformation of the GaN layer grown on *a*-plane sapphire. This result allows, in particular, to carry out theoretical estimates of the elastic deformation and piezoelectric field in pseudomorphic heterostructures, where GaN layers grown on *a*-plane sapphire are used as a virtual substrate or a buffer layer.