

# Observation *in-situ* de l'évolution de nanotubes dans GaN, sous irradiation électronique

Frédéric Pailloux<sup>a,\*</sup>, Jérôme Colin<sup>a</sup>, Jean Grilhé<sup>a</sup>, Jean-François Barbot<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire de Métallurgie Physique, UMR6630 CNRS/Université de Poitiers, Bd M. & P. Curie, 86962 Futuroscope-Chasseneuil, France

---

**Résumé** – Ce travail porte sur l'étude de l'évolution morphologique *in-situ* de nanotubes dans le nitrure de gallium, soumis à une irradiation aux électrons. La transition morphologique observée y est interprétée en termes d'abaissement d'énergie de surface. Le rôle de l'oxygène dans cette transition est également discuté.

---

## 1. Introduction

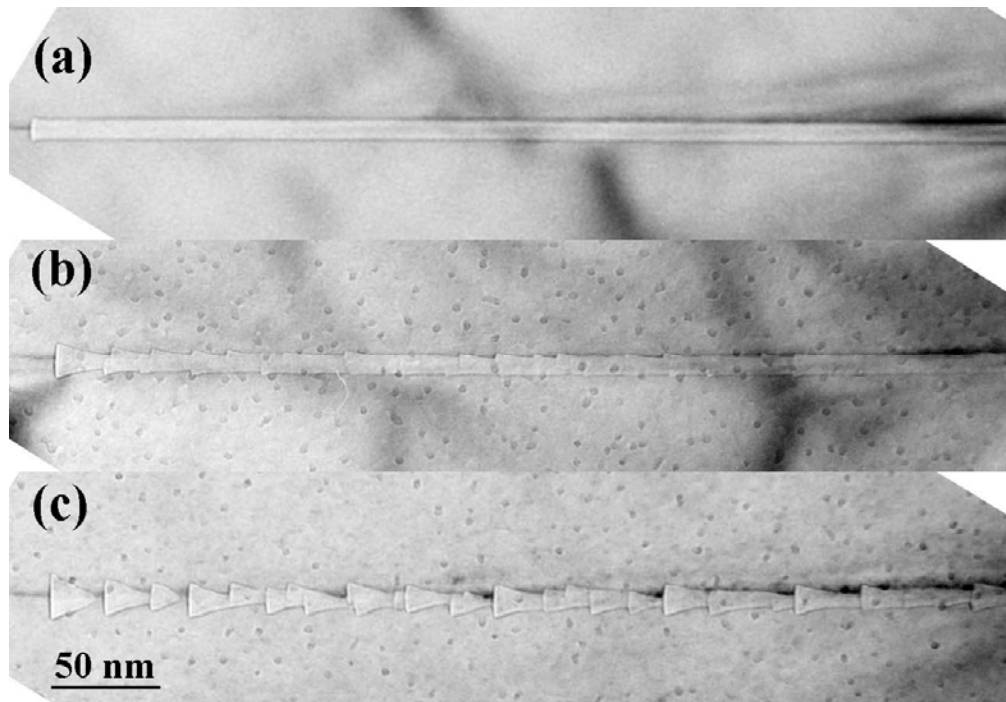
Le nitrure de gallium (GaN) est un des semi conducteurs à large bande interdite ( $E_g=3.39$  eV) les plus prometteurs pour des applications en opto-électronique et dans les dispositifs de grande puissance ou de haute fréquence. Cependant, sa synthèse par croissance épitaxiale, sur des substrats de saphir, donne en général naissance à un assez grand nombre de défauts structuraux tels que des dislocations traversantes ( $10^9$  cm<sup>-2</sup>) et des nanotubes ( $10^6$  cm<sup>-2</sup>). De nombreux travaux ont été consacrés à la compréhension de la genèse et de la structure de ces défauts, ainsi qu'à leur influence sur les propriétés opto-électroniques. Différents scénarios ont été proposés pour expliquer l'apparition de dislocations à cœurs creux ; il semble aujourd'hui admis que la ségrégation d'impuretés (oxygène par exemple) au cours de la croissance en soit le moteur principal. Dans une étude récente, Hawkridge & Cherns [1] ont montré que l'oxygène peut se substituer à l'azote au cœur des dislocations. En abaissant l'énergie de surface des plans {10-10}, cette impureté favoriserait l'ouverture du cœur de la dislocation (de type vis), conduisant ainsi à la naissance et au développement d'un nanotube. Il a déjà été observé par ailleurs des dislocations à cœurs alternativement ouvert et fermé (chaîne de cavités pyramidales, structure en bambou), ce qui suggérerait que la morphologie du cœur des dislocations vis serait gouvernée par la concentration en oxygène. Notre étude tend à tempérer cette vision de la genèse de telles structures.

## 2. Résultats

L'échantillon analysé dans cette étude est un monocristal de GaN (7 $\mu$ m) épitaxié par MOCVD sur un substrat de saphir (0001). Des coupes transverses de cet échantillon ont ensuite été préparées pour les observations par microscopie électronique en transmission. Cette préparation a été menée en deux étapes : un amincissement mécanique (tripode) jusqu'à une épaisseur inférieure à 10 $\mu$ m suivi d'un amincissement ionique (PIPS, Ar 2.5keV). Il est à noter qu'aucun nettoyage par plasma d'oxygène n'a été effectué avant observation de l'échantillon. Les irradiations et les observations ont été réalisées dans un microscope JEOL 3010 (LaB<sub>6</sub>, 300kV, 0.19 nm). Le flux d'électrons reçu par l'échantillon a été estimé à  $10^{19}$  e<sup>-</sup>.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> ; la durée de l'irradiation a été limitée à 6 heures. Les micrographies obtenues à différents stades de l'évolution montrent clairement que sous l'effet d'une irradiation prolongée, un nanotube possédant à l'origine des parois parfaitement lisses se transforme successivement en un tube à parois rugueuses (structure en bambou) puis en une chaîne de cavités pyramidales reliées par une dislocation à cœur fermé (fig. 1). Nous décrivons cette transition en termes d'abaissement de l'énergie de surface et suggérons que l'origine de ce phénomène est la création, par le faisceau d'électrons, de défauts ponctuels (paires de Frenkel) qui provoquent l'apparition d'une rugosité sur les surfaces latérales des nanopipes [2]. Ces défauts ponctuels proches des nanopipes favorisent la formation de facettes de type {10-11} énergétiquement plus favorable que les faces d'origines de type {10-10}. Il est à noter qu'en conséquence de la nature polaire de la structure wurtzite, les cavités pyramidales ainsi formées sont toutes orientées dans la même direction (*i.e.* la pointe est orientée en direction du substrat). L'irradiation prolongée de cette structure conduit d'une part à un mécanisme de murissement d'Oswald et d'autre part à un mouvement latéral des cavités pyramidales qui s'éloignent de leur site de formation. Nos observations les plus récentes nous permettent en outre de conclure que quelque soit la longueur d'onde de la rugosité se développant initialement sur la paroi du nanotube, le rapport d'aspect des cavités pyramidales abouti à une valeur fixée par la structure cristallographique du GaN.

---

\* Auteur à contacter : frederic.pailloux@univ-poitiers.fr – Tel : 05 49 49 67 83



**Figure 1.** Transformation d'un nanowire en chapelet de cavités. (a) Structure initiale : début d'irradiation (b) Premier stade de l'évolution, création de défauts ponctuels dans GaN et apparition d'une rugosité sur les surfaces du nanowire. (c) Après quelques heures d'irradiation, le nanowire est entièrement décomposé en une chaîne de cavités pyramidales.

### 3. Discussion

Bien que le rôle de l'oxygène dans cette évolution reste mal compris, nous montrons que la configuration finale (chapelet de cavités) est plus stable que celle de départ (nanowire régulier) et que de fait, la présence ou non d'oxygène ne semble pas être le seul critère à prendre en compte. En effet il nous semble improbable, dans la géométrie que nous avons adoptée pour mener cette étude (coupe transverse), que de l'oxygène soit introduit ou extrait du cœur des nanotubes et participe à l'évolution morphologique de ces structures.

### 4. Références

- [1] Hawlridge M.E. and Cherns, D., *Appl. Phys. Lett.* **87** (2005) 221903
- [2] Pailloux F., Colin J., Barbot, J.F. and Grillé J., *Appl. Phys. Lett.* **86** (2005) 131908