

질화갈륨 박막의 유전 상수

Dielectric constant of GaN thin films

김혜림, 추장희
한전 전력연구원 전력계통연구실

Hye-Rim Kim and Jang Hee Chu
Power System Laboratory, Korea Electric Power Research Institute

Abstract

We measured the dielectric constant of undoped GaN thin films grown on (0001) sapphire substrates in 0.8 ~ 4.5 eV energy (276 ~ 1550 nm wavelength) range by spectroscopic ellipsometry. For more accurate data analysis we also performed X-ray diffraction, photoluminescence and Rutherford backscattering spectroscopy on samples. Data were analyzed with a four-phase model. The dielectric constant of GaN thin films was obtained not only in the transparent region but also around the absorption edge. Absorption edge energy, 3.399 ± 0.002 eV was determined from the obtained dielectric function.

Key words(중요 용어) : GaN(질화 갈륨), dielectric constant(유전 상수), refractive index(굴절률)

1. 서론

최근 질 좋은 GaN 박막을 성장할 수 있게 됨에 따라 발광다이오드(light emitting diode)나 레이저 다이오드와 같은 광소자의 재료로 각광을 받게 되었다. GaN는 흡수 끝머리(absorption edge) energy가 3.4 eV로 InN(흡수 끝머리 energy 1.9 eV)과 혼합하였을 때 1.9 ~ 3.4 eV(365 ~ 652 nm 파장) 사이의 광범위한 빛을 낼 수 있는 물질이다.

실제로 일본의 Nichia Chemical에서는 청색 발광 다이오드의 개발에 이어 발광시간 10,000 시간이 넘는 청색 레이저 다이오드를 개발하였고 최근에 황색 발광다이오드를 개발하는데 성공하였다. 이외에 GaN는 다른 반도체 물질에 비해 고온과 화학약품에 잘 견디므로 발전소와 같이 열악한 환경에서 사용할 수 있는 전자소자 물질로도 주목받고 있다.

광소자를 설계하는 데에는 그 광소자를 구성하는 물질의 유전상수 정보가 필요하다. 이는 유전상수가 그 물질 내에서의 빛의 전파 성질을 결정하기 때문이다. 지금까지 GaN 박막의 유전 상수를 측정된 결과가 문헌에 나와 있으나 값이 서로 다른데 이는 GaN 박막 시료 질의 차이와 유전 상수 측정

및 분석 방법의 차이에 기인한 것으로 본다. 따라서 측정 오차의 근원을 밝힘으로써 유전 상수 값을 좀 더 정확하게 결정하는 것이 필요하다. 그리고 흡수 끝머리 근처에서의 유전 상수가 거의 알려지지 않았다.

본 연구는 GaN 박막의 유전 상수를 광소자의 발광파장 영역과 흡수끝머리 근처의 파장 영역에서 측정하여 GaN계 광소자의 설계에 필요한 자료를 제공하는 것을 목적으로 한다. 분광타원계(spectroscopic ellipsometry)를 사용하여 0.8 ~ 4.5 eV 에너지 (276 ~ 1550 nm 파장) 범위에서 (0001) sapphire 기판에 성장된 도핑되지 않은 GaN 박막의 유전 상수를 측정하였다.

2. 실험

GaN 박막 시료는 미국 Cree Research사에서 구매하였으며 한 쪽만 polish된 (0001) sapphire 기판 위에 성장되었다. 시료는 의도적으로 도핑되지 않았고 Cree Research사 사양에 의하면 순 도핑 농도는 $5 \times 10^{16} / \text{cm}^3$ 이하라고 되어 있다. 유전 상수를 정확히 결정하기 위하여, photoluminescence, 러더포드 후방산란 분석법(Rutherford backscattering

spectroscopy, RBS) 및 X선 회절을 사용하여 시료의 특성을 분석하였다. Photoluminescence는 He-Cd laser로 시료를 여기시켰는데 측정 결과 14 K에서 A exciton peak의 반치폭이 3.5 meV로 나타났다. 러더포드 후방산란 분석에서는 beam energy는 2.240 MeV, dose 15 μ coulomb, detector 각은 165 도였다. 시료의 조성 외에 결정성도 알아보기 위하여 random 스펙트럼 외에 channeling 스펙트럼도 측정하였다. 측정 결과는 그림 1과 같다. 기판 근처를 제외한 부분의 경우 그림에서 channeling 스펙트럼이 random 스펙트럼에 비해 아주 작은 것으로 보아(최소수율 1.5%) 결정성이 매우 양호한 것을 알 수 있다. X선 회절을 이용한 특성 조사에서는 결정성을 알아보기 위하여 θ -2 θ scan 외에 rocking curve를 얻었으며 반치폭이 0.75 $^\circ$ 이었다. 러더포드 후방산란 분석 결과를 볼 때 기판 근처를 제외한 부분의 반치폭은 이보다 작을 것으로 생각된다. 이와 같은 특성 검사 결과를 종합했을 때 GaN 박막 시료의 질이 매우 양호한 것으로 나타났다.

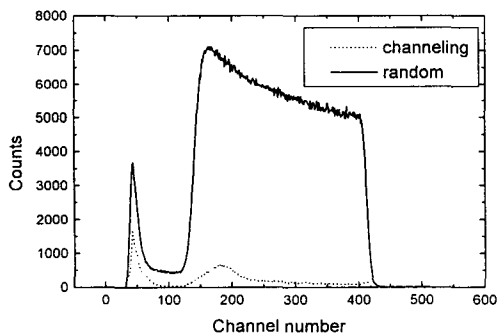


그림 1 GaN 박막 시료의 러더포드 후방산란 스펙트럼(총 channel 수: 512)

GaN 박막의 유전 상수는 분광 타원분석법(spectroscopic ellipsometry)을 사용하여 측정하였다. 분광타원분석법은 참고문헌¹⁾에 자세히 설명되어 있다. 사용한 타원계는 Jobin-Yvon 사의 위상 변조형(phase modulated) 분광 타원계인데, Xe 방전등을 광원으로 사용하였고 monochromator와 photomultiplier tube 및 InGaAs detector를 써서 0.8 ~ 4.5 eV 에너지 (276 ~ 1550 nm 파장) 영역에서 측정하였다. 흡수끝머리 주변(3.2 ~ 3.6

eV)에서는 유전 상수의 에너지에 따른 변화가 많으므로 2 meV 간격으로 측정하였고 나머지 구간에서는 10 meV 간격으로 측정하였다. 시료는 화학적 처리를 하지 않고 Cree Research사에서 받은 대로 측정하였다.

타원편광분석 data는 공기/표면층/박막/기판의 4-상 모델을 사용하여 분석하였다. 기판의 뒷면이 polish되지 않아 난반사가 일어나므로 기판을 반 무한대 매체로 간주하였다. 기판의 유전 상수로는 문헌의 값을 사용하였고²⁾, 표면층의 유전 상수로는 표면층이 Ga의 산화물로 구성되어 있다고 보고 문헌에 있는 GaAs 산화막의 유전 상수 값을 사용하였다³⁾. 표면층의 두께는 이전의 연구 결과로부터 추정하였다(3.5 nm). GaN 박막의 유전 상수 값은 oscillator model과 같은 유전 함수 model에 맞추지 않고 각각의 에너지마다 독립적으로 산출하였다. Oscillator model은 흡수 끝머리에서 떨어져 있는 투명한 영역에서는 실험치와 잘 맞으나 흡수 끝머리 주변 영역에서는 잘 맞지 않는다.

3. 결과 및 토의

GaN 박막 시료에 대해 타원편광분석법으로 측정된 측정치 Ψ , Δ 는 그림 2와 같다. 3.4 eV 이하에서는 Ψ , Δ 값이 진동하고 그 이상에서는 진동이 없는 것으로 보아 알려진 바와 같이 3.4 eV 이하에서는 박막 시료가 투명하고 그 이상에서는 빛을 흡수하여 불투명한 것을 알 수 있다.

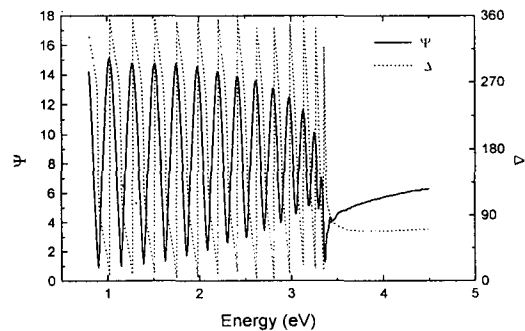


그림 2 GaN 박막 시료에 대한 타원편광분석법 data

Ψ , Δ 값을 분석하였을 때 투명한 영역에서는 주

어진 GaN 박막 두께 값에 대해 ψ , Δ 실험치를 만족하는 유전상수 값이 여러 개 존재한다. 이들 복수 해(multiple solution)로부터 물리적으로 의미 있는 값을 얻기 위하여 GaN 박막층에서의 위상 차가 2π 의 정수배가 되는 에너지에서 즉 다음 식 1을 만족하는 에너지에서 $\Delta=0$ 이고 ψ 가 최대치가 됨을 이용하였다.

$$4\pi\sqrt{\epsilon_{GaN} - \sin^2\phi} t_{GaN} E/hc = 2\pi m \quad (1)$$

여기서 ϵ_{GaN} 과 t_{GaN} 는 각각 GaN 박막의 유전상수와 두께, $hc=1239.85$ eV/nm, m 은 정수이다. 그림 3에는 $\Delta=0$ 이고 ψ 가 최대치가 되는 에너지 값을 order 번호의 함수로 나타내었다. 2.0 eV 이하에서는 에너지 간격이 균일하고 2.0 eV 이상에서는 간격이 감소하는데, 이는 2.0 eV 이하에서는 GaN 박막의 유전상수가 에너지에 따라 거의 변하지 않고 2.0 eV 이상에서는 유전상수가 증가하고 증가하는 속도가 에너지에 따라 빨라짐을 말해준다.

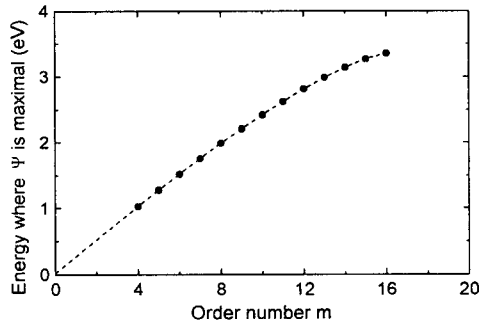


그림 3 ψ 가 최대치가 되는 에너지

위 식 1에서 알 수 있는 것과 같이 투명한 영역에서 GaN 박막의 유전상수를 구하려면 GaN 박막의 두께를 알아야 한다. 타원편광분석법의 측정치가 다른 방법보다 박막의 두께에 예민하게 영향을 받으므로 그림 2의 data를 분석하여 유전상수와 두께를 함께 결정하였다. 선택한 두께 값에 대하여 각 에너지마다 유전상수를 구한 후 유전상수의 에너지에 따른 진동이 가장 작은 두께 1172 nm를 박막의 두께로 선정하였다. 흡수 끝머리에서 떨어진 3.0 eV 이하의 에너지 영역에서는 이 결과가 측정치를 multiple oscillator model에 맞춘 결과와 일치

한다. 두께의 초기 값 선정에는 리더포드 후방산란 분석법 측정치를 박막 시료의 밀도가 bulk GaN의 밀도와 같다는 가정 하에 분석한 결과(약 1.0 μ m)를 이용하였다. 그러나 이렇게 얻은 1172 nm를 박막 두께 값으로 사용하여 흡수끝머리보다 높은 에너지에 대해 산출한 유전상수의 허수 부분 값은 0.3보다 작아 물리적으로 맞지 않다. 이는 1172 nm가 정확한 박막 두께 값이 아니라는 것을 의미한다. 따라서 유전상수의 허수 부분 값이 흡수끝머리보다 높은 에너지에서 0.3보다 크게 나오는 박막 두께 값 중에서 투명한 영역에서의 유전상수 값의 진동이 가장 적은 값 1130 nm를 GaN 박막의 두께 값으로 결정하였다. 1130 nm를 박막 두께 값으로 사용하여 산출한 GaN 박막의 유전상수 결과는 아래 그림 4와 같다.

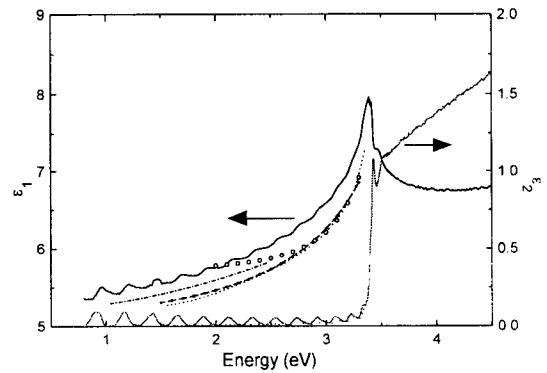


그림 4 GaN 박막의 유전 상수

ϵ_1 (유전 상수의 실수 부분):

- 실선 - 1130 nm로 산출한 값
- 점선 - 1172 nm로 산출한 값
- 일점 쇄선 - Miragliotta 연구팀
- 쇄선 - Yu 연구팀
- 열린 원 - Billeb 연구팀

ϵ_2 (유전 상수의 허수 부분):

- 실선 - 1130 nm로 산출한 값
- 점선 - 1172 nm로 산출한 값

위 그림에는 1130 nm를 박막 두께 값으로 사용하여 산출한 GaN 박막의 유전상수 결과 외에 1130 nm를 박막 두께 값으로 사용하여 산출한 결과와 다른 연구 그룹이 투명한 영역에서 측정된 결과도 나타나 있다. Yu 그룹의 결과⁴⁾는 1172 nm로 산출한 결과와 거의 일치한다. Billeb 그룹의 결

파와는 2.8 eV 이상에서 일치한다. 2.8 eV 이하에서 차이가 나는 것은 Billeb 그룹이 측정에 사용한 시료에 2.8 eV 이하에서 강한 황색 band가 있어 그림 4에 나타난 유전상수 값이 정확하지 않기 때문인 것으로 생각된다. 이들 두 그룹에서 산출한 유전상수의 값이 본 연구에서 1172 nm로 산출한 결과와 일치하는 것은 이들 그룹이 투명한 영역에서만 data를 측정하여 흡수끝머리 주변에서의 유전상수 값을 고려하여 분석할 수 없었기 때문이다. Miragliotta의 결과는 1130 nm로 산출한 결과와 1172 nm로 산출한 결과 사이에 위치하고 1154 nm로 산출한 결과와 일치한다. 이를 종합해 볼 때 여러 연구 그룹이 측정한 결과가 서로 다른 중요한 원인은 시료의 질 차이 외에 각 그룹에서 추정된 박막의 두께 값의 차이에 기인하는 것으로 생각된다.

그림 4에서 보면 본 연구에서 1130 nm로 산출한 유전상수의 값이 에너지에 따라 그림 2의 ψ , Δ 와 같은 주기로 진동한다. 이는 본 연구에서 data 분석에 사용한 4-상 model이 충분하지 않음을 말해준다. 좀 더 정확한 유전상수 값을 얻기 위해서는 model에 한 층을 추가하여 5-상 model을 사용해야 할 것으로 생각된다.

산출한 유전상수 값으로부터 흡수끝머리 에너지를 결정하였다. 흡수끝머리 주변 유전 함수의 이차 미분을 선모양식(line shape equation)에 맞추어 흡수끝머리 에너지로 3.399 ± 0.002 eV를 얻었다.

4. 결론

(0001) sapphire 기판 위에 성장된 도핑되지 않은 GaN 박막의 유전 상수를 0.8 ~ 4.5 eV 에너지(276 ~ 1550 nm 파장) 범위에서 측정하였다. 이는 투명한 영역 외에 흡수끝머리 주변의 에너지 영역을 포함한다. 투명한 영역에서의 유전 상수 값을 흡수끝머리 주변에서의 값과 연계함으로써 측정된 유전 상수 값의 정확도를 높였다. 분석 결과 투명한 영역에서의 유전 상수를 산출함에 있어 4-상 model로는 충분치 않고 더 정확한 model이 필요한 것으로 나타났다. 측정된 유전 상수 값으로부터 흡수끝머리 에너지, 3.399 ± 0.002 eV를 산출하였다.

참고 문헌

1. R. M. A. Azzam and N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light*

(North-Holland, Amsterdam, New York, Oxford, 1977)

2. Irving H. Malitson, *J. Opt. Soc. Am.* Vol. 52, 1377, 1962

3. D. E. Aspnes, B. Schwartz, A. A. Studna, L. Derick and L. A. Koszi, "Optical properties of anodically grown native oxides on some Ga-V compounds from 1.5 to 6.0 eV", *J. Appl. Phys.* Vol. 48, pp. 3510-3513, 1977.

4. G. Yu, G. Wang, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Soga, T. Egawa, J. Watanabe and T. Jimbo, "Optical properties of wurtzite structure GaN on sapphire around the fundamental absorption edge (0.78-4.77 eV) by spectroscopic ellipsometry and the optical transmission method", *Appl. Phys. Lett.* Vol. 70, pp. 3209-3211, 1997.

5. A. Billeb, W. Grieshaber, D. Stocker, E. F. Schubert and R. F. Karlicek, Jr., "Microcavity effects in GaN epitaxial films and in Ag/GaN/sapphire structures", *Appl. Phys. Lett.* Vol. 70, pp. 2790-2792, 1997.

6. J. Miragliotta, D. K. Wickenden, T. J. Kistenmacher and W. A. Bryden, "Linear- and nonlinear-optical properties of GaN thin films", *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 10, pp. 1447-1456, 1993.