

## 실리콘 기판위에 분자선속법으로 성장한 GaAs 에피층

이동선, 우덕하, 김대욱, 우종천  
서울대학교 물리학과

### Molecular Beam Epitaxial Growth of GaAs on Silicon Substrate

D. S. Lee, D. H. Woo, D. W. Kim and J. C. Woo  
Department of Physics, Seoul National University

#### 요 약

분자선속 방법으로 실리콘 기판위에 GaAs의 에피층을 성장하고, 이를 분석한 결과를 보고한다. 두 종류의 실리콘 기판에 성장 조건을 다르게 한 시료를 준비하고, SEM, TEM, X-ray 회절, PL, Hall 등의 방법으로 분석하였다. 결정면에서 약간 기울여 절삭한 기판에 이단계 성장법으로 성장한 에피층이 보다 좋은 결정 구조를 갖으며, multi-quantum well buffer layer를 삽입하는 것이 stress 해소 등에 도움이 된다. 또 GaAs 에피층은 저절로 실리콘으로 doping이 되는데, exciton bound된 에너지 준위를 통한 radiative recombination은 homoepitaxial GaAs 에피층보다 잘 일어나지 않는 것으로 관측되었다.

#### ABSTRACT

Molecular beam epitaxial growth of GaAs on Si substrate and the results on its analysis are reported. Epitaxy was performed on two different types of the substrate under various growth conditions, and was analyzed by scanning and transmission electron microscopes, X-ray diffractometer, photoluminescence and Hall measurements. GaAs epitaxial layer has better crystalline quality when it was grown on a tilt-cut substrate. The stress seems to be released more easily when multi-quantum well was introduced in the buffer layer. The epilayer was doped unintentionally with Si during the growth due to the diffusion of the substrate. Also observed is that the quantum efficiency of excitonic radiative recombination of the heteroepitaxy is not as good as that of the homoepitaxy in the same doping level.

#### 1. 서 론

실리콘(Si) 기판위에 GaAs 에피층을 성장하는 소위 Monolithic GaAs on Si(MGS) 기술은

GaAs로 실현이 가능한 광전소자나 고속소자를 이미 개발되어 있는 Si 고집적회로와 한 기판위에 monolithic integration을 할 수 있기 때문에 관심을 모으고 있는 연구분야이다. MGS를 만드는데 가장 보편적이고 성공적인 방법은

분자선속 성장법(molecular beam epitaxy : MBE)으로 알려져 있으며, 이 방법으로 성장한 에피층의 상태의 분석 결과도 이미 여러 논문 에 보고되고 있다 [1-6]. 그러나 GaAs on Si heteroepitaxy는 GaAs와 Si 두 물질의 결정구조, 격자상수, 열팽창 계수 등 근본적인 물성의 차이가 존재하기 때문에, 이 문제들을 극복하여야 하는 문제점이 있다. 특히 epilayer를 소자에 이용할 정도가 되려면 불순물, 결정 결함 등이 거의 없는 것을 만들 수 있어야 하는데, 이미 소자제작에 사용이 가능한 양질의 MGS 를 성공적으로 제작한 결과가 보고된 단계이다 [7,8].

물성의 차이에 기인하는 문제점을 보다 자세히 살펴보면 다음과 같다. 첫째, 결정 구조와 molecular polarity의 차이 때문에 anti-phase domain(APD), misfit dislocation, 격자 결함 등이 생성된다. Non-polar인 Si 표면에 polar GaAs의 생성을 최소화할 수 있다. 이 경우에는 As이 Si면에 결합하도록 하여야 한다 [2,5, 9]. 한편, diamond구조의 실리콘 기판위에 zinc-blende구조를 갖는 GaAs를 쌓을 때 두 물질 사이에 약 4%의 격자 상수 차이가 있고, 경계면에 구조적 차이가 있어서 어려움이 생긴다. 격자 상수 4% 정도의 차이는 기판의 경계면을 적절한 기울기로 절단하여 계수를 같게 하는 방법이 있다. 기판의 표면을 기울여서 절삭할 경우 절삭하는 방향이 문제가 되는데, 이때 결정구조의 차이에서 오는 dislocation의 생성과 전파를 방지하는 방향을 취하는 것이 바람직하다. 실리콘 기판을 (100)면에서 [011]방향으로 약 3° 기울여 절삭한 면이 Burgers vector의 전파, threading dislocation과 stacking fault의 발생을 줄이는 것으로 알려져 있다 [5,10-13].

분자선속 성장법(molecular beam epitaxy ; MBE)으로 GaAs epilayer를 성장할 때 보통 기판 온도는 약 600°C가 되는 것으로 알려져 있다. 그러면, GaAs와 실리콘 사이에는 약 60%의 열팽창 계수의 차이가 존재하기 때문에, 성장 온도와 실온의 차이에서 오는 변형은 epilayer에 tensile stress를 준다. 이를 최소화

하기 위한 방법으로는 낮은 온도에서 nucleation layer를 성장한 후에 성장온도를 homoepitaxy조건으로 올리는 2단계 성장 과정을 쓰는 것이 도움이 된다고 알려져 있다 [1-3,14].

본 논문에서는 MBE 장치를 이용하여 성장 조건을 약간 다르게 하면서 실리콘 기판위에 GaAs 에피층을 생장하고, 에피층의 상태를 reflection high energy electron diffraction (RHEED) 방법으로 생장이 진행중에 분석하였고, double-crystal X-ray diffraction, scanning electron microscopy(SEM), transmission electron microscopy(TEM) 방법으로 성장 후 시료의 morphology를 분석하였다. 또, Hall 효과 및 전기 비저항 측정, photoluminescence(PL) 분광방법으로 에피층의 물성을 분석하였는데, 그 결과를 소개한다.

## 2. 성장 과정과 분석방법

본 실험에서는 기판과 성장조건, 에피층의 구조가 약간씩 다른 4종류의 시료를 성장하였다. 이들을 편의상 시료 1, 2, 3, 4라 부르겠다. 모든 시료에 사용된 실리콘 기판의 처리는 먼저 유기용매로 기판을 degrease한 후에, 75-80°C에서 일차로 수산화암모늄과 과산화수소수와 물이 1:1:7로 배합된 용액으로, 다음 황산과 과산화수소수와 물이 1:1:5로 배합된 용액으로 각각 10분 동안씩 etching한 후, 5% HF 용액에 약 15분 정도 담가서 Si 기판 표면의 산화막을 일차 제거하였다. 이렇게 처리된 기판을 MBE에 넣은 후 400°C에서 일차로 15분 동안 thermal treatment한 후, 다시 750°C에서 15초 동안 가열하여 표면에 흡착된 산소를 제거하였다. 이들 두 과정의 thermal treatment는 MBE장치내의 초진공(UHV)에서 이루어졌다.

시료 1은 (100) 방향의 표면을 갖는 실리콘 단결정 wafer를 기판으로 하여 GaAs 에피층을 약 0.5 $\mu$ m의 두께로 성장한 것이고, 시료 2, 3, 4는 [011] 방향으로 3° 기울어진 (100) Si

표면 위에 GaAs를 성장한 것으로 시료 2는 GaAs 에피층이 불과  $0.7\mu$ 의 두께인 반면, 시료 3과 4는 약  $3.5\mu$ 의 두께를 갖도록 성장한 것이다.

GaAs 에피층의 성장은 두 단계 방법(two-step method)으로 행하였다. 첫 단계에서는 기판 온도를  $450^{\circ}\text{C}$ 로 유지하고, 성장 속도도  $0.4\mu/\text{hr}$ 로 낮게 유지하면서 20분 동안 nucleation layer를 쌓고, 그 다음 기판 온도를 약 7분 동안에  $600^{\circ}\text{C}$ 까지 점차 증가시켜서 homoepitaxy의 경우와 성장 조건을 같게 한 후, 이 온도에서 성장속도를  $1.0\mu/\text{hr}$ 로 유지하면서 GaAs active layer를 성장하였다. 단, Sample 3의 경우 nucleation layer를 성장할 때

부터 기판 온도를  $600^{\circ}\text{C}$ , 성장 속도를  $1.0\mu/\text{hr}$ 로 유지하였다. 한편, Sample 3과 4에서는 nucleation layer와 active layer 사이에 GaAs-AlGaAs multi-quantum well를 삽입하였다. 이는 열팽창 계수의 차이에서 발생하는 stress를 에피층과 평행한 방향으로 분산시키어, 광학적 전기적 특성을 향상시켜 보기 위해서 시도되었다 [15].

MBE에서 GaAs 에피층을 성장하는 과정에 10KeV의 전자선을 에피층 표면에 반사회절시키고 이 무늬를 분석하는 RHEED방법으로, 성장과정중의 결정 상태를 조사하였다. SEM으로 MGS의 표면을, TEM으로 기판과 에피층 경계면 부근의 단면 상태를, X-선 2중 회절의 방

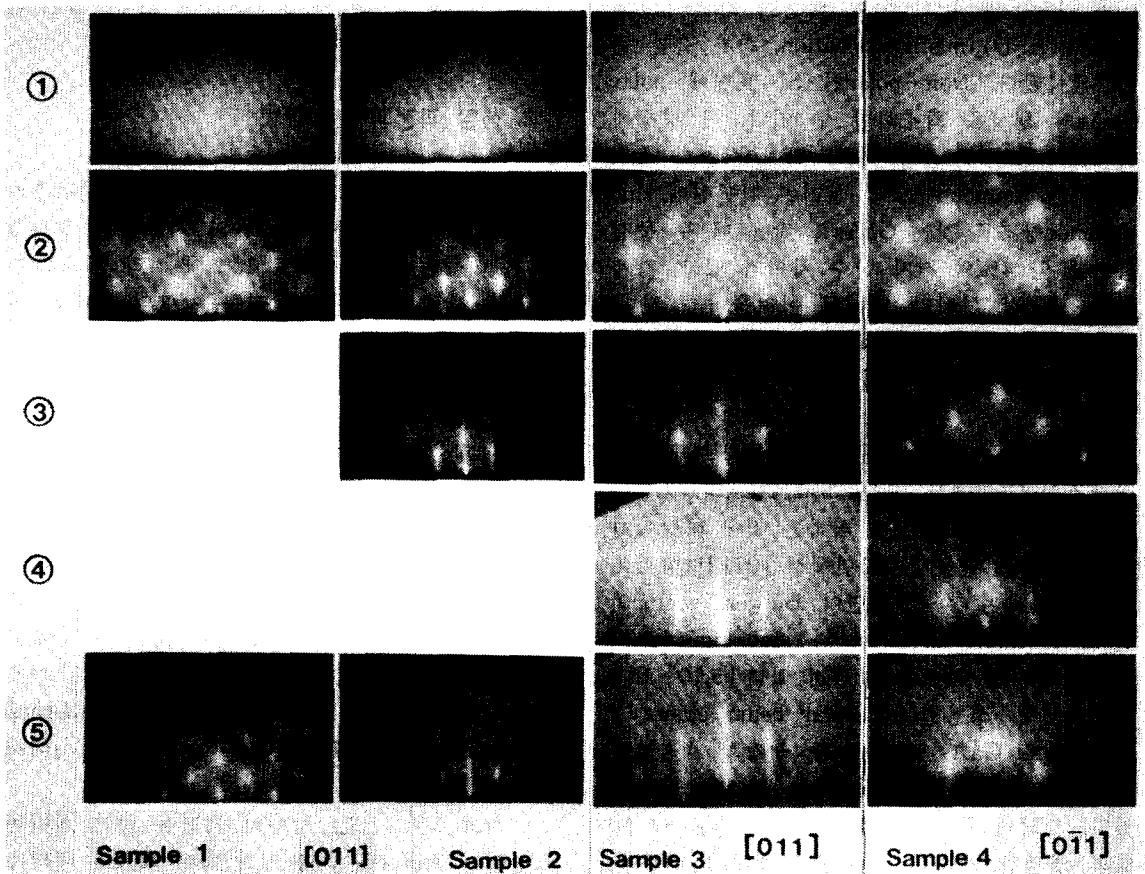


Fig. 1. RHEED patterns of Samples 1-4 in various stages of MBE growth.

법으로 에피층의 morphology를 분석하였다. 또, MGS와 homoepitaxy GaAs 에피층의 PL, Hall 및 전기비저항을 비교 조사하여 성장한 MGS의 물성을 분석하였다. 분석한 결과는 다음과 같다.

### 3. 분석 결과와 토론

먼저, MBE로 GaAs 에피층을 성장하는 과정의 결정 상태를 RHEED 무늬를 통하여 조사한 것이 Fig. 1에 소개되어 있다. 이들은 GaAs (001) 표면의 C(2×8)에 해당하는 무늬이다. 사진은 각 시료별로 세로로, 각 과정별로 가로로 배열되어 있다. 과정 ①은 에피층을 성장하기 전에 실리콘 기판 표면의 무늬이고, ②은 nucleation layer를 쌓기 시작한 때로부터 약 2-3초 지난 후 GaAs 표면, ③은 nucleation layer 성장을 마친 직후의 GaAs 표면, ④는 시료 3, 4에 대해서만 해당되는 것으로 multi-quantum well buffer layer를 쌓은 후 GaAs의 표면, ⑤는 active GaAs layer의 성장을 마친 후의 표면에서 나온 회절무늬이다. 과정 ②에서 보듯이 Si 기판 위에 GaAs를 쌓은 지 2-3초가 지나면 회절무늬가 spotty해지는 것을 관측할 수가 있다. 그리고 과정 ③에서 보듯이 nucleation layer를 쌓는 동안 계속 무늬는 spotty한 모양을 유지하고 있다. 그러나, 기판의 온도를 600°C로 올려주면, 시료 2, 3, 4와 같이 경사면을 갖은 기판의 시료들은 무늬가 streaky해지는 반면, 정확히 (100) 표면을 갖는 실리콘 기판을 쓴 시료 1의 경우에는 여전히 spotty한 상태로 남아 있음을 볼 수 있다. 600°C에서 GaAs 에피층의 성장이 진행됨에 따라 streaky한 형태의 무늬가 생겨나는데, 시료 2보다는 시료 3, 4에서 보다 빨리 streaky한 형태의 무늬가 나타나고, 시료 3과 4 사이에는 별 차이가 없는 것으로 관측되었다. Streaky한 무늬가 나타낸 것은 표면이 결정의 규칙적 배열을 갖는 것을 의미한다. 그러나 시료 1에서는 streaky한 무늬는 얻지 못하고, 계속 spotty하게 남아 있었는데, 이는 여러 방향

의 결정의 집합으로 성장이 이루어졌음을 의미한다 [4,16,17].

Fig. 2에 SEM으로 성장된 표면을 1,000배와 10,000배로 확대하여 관측한 사진이 수록되어 있다. 시료 1은 표면이 여러 둥근 점들로 이루어진 것으로 보아 작은 여러개의 결정이 모여 있는 것을 확인하여 준다. 반면, 시료 2, 3, 4에는 비교적 넓은 면이 평평한 것으로 보아 단결정이 형성되고 있는 것으로 보인다. 특히 시료 2에서 선명하게 보이는 V자 형태의 결함은 APD의 영향이 0.7 $\mu$ m의 두께인 에피층 표면까지 지속된 것을 보여주나, 이들이 한 방향으로 배열되어 있는 것은 단결정 성장이 비교적 순조롭게 진행되고 있음을 말해 준다. 시료 3, 4는 표면의 결함 모양이 한 방향으로 정렬되어 있고 또 평평한 면의 넓이도 현저히 넓음을 보여 준다. 이러한 표면 형태는 시료 3, 4가 시료 1, 2에 비해 좋은 결정 morphology를 갖는다고 할 수 있다. 시료 3과 4를 비교하면 RHEED 무늬에서는 별차이가 없었지만, SEM 무늬에서 본 표면은 시료 4가 현저히 더 평평함을 알 수 있다. 이는 시료 4의 성장 조건, 즉 nucleation layer를 느린 growth rate로 쌓을 때 더 좋은 morphology의 에피층을 얻을 수 있다는 것을 확인할 수 있다.

에피층의 결정 구조 형성이 비교적 순조로우면서도 APD의 영향이 표면까지 노출된 시료 2의 단면을 TEM을 이용하여 관측한 결과가 Fig. 3에 있다. 위의 두 사진과 아래 왼쪽은 50,000배로, 아래 오른쪽은 30,000배로 확대하여 관측한 것이다. 기판과 에피층의 경계면 근처에서 비교적 높은 dislocation density를 갖고 있다가, 에피층이 성장되어 가면서 dislocation이 점점 줄어 들고 있음을 볼 수 있다. 또, 이들 dislocation들은 APD(사진에서 약 45° 방향으로 있는 선들)이 만나서 서로 상쇄되면서 성장이 진행되어 감에 따라 이들이 줄어들고 있음을 볼 수 있다. 정확히 (100) 표면을 갖는 실리콘 기판 위에 성장한 GaAs 에피층에서는 threading dislocation이 많이 존재하는 반면, [011] 방향으로 3° 경사지게 절삭한 기판위에

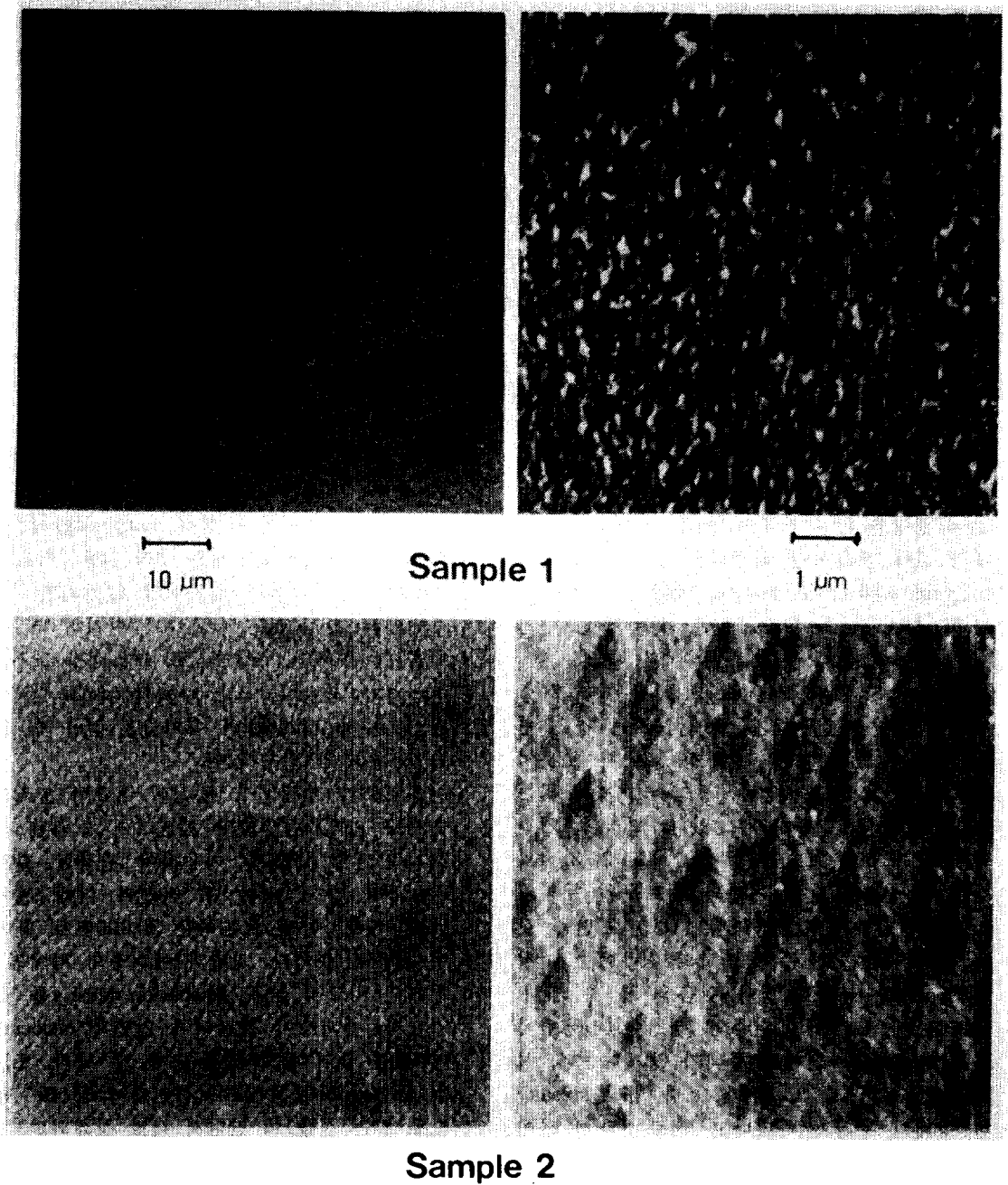
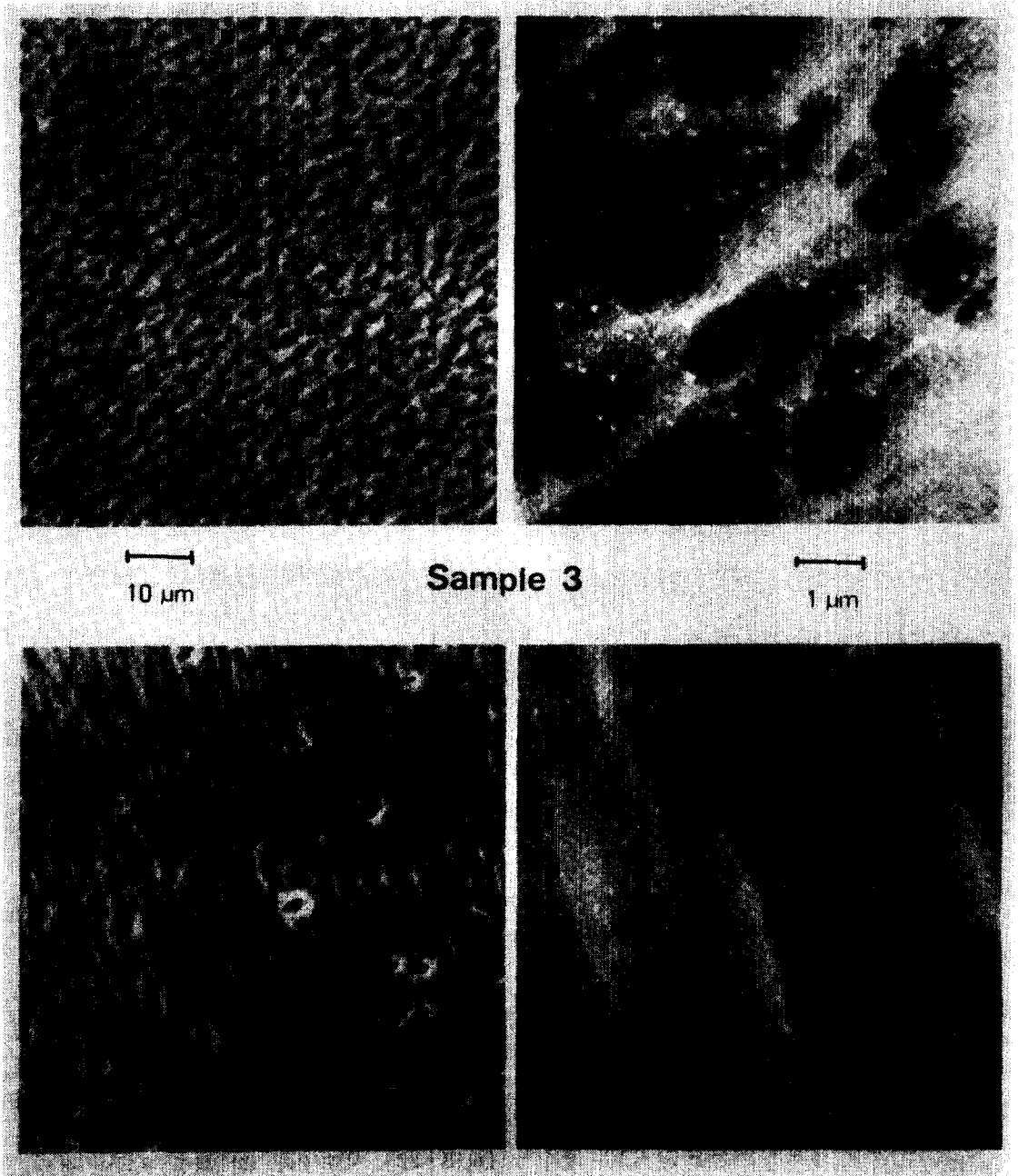


Fig. 2. SEM pictures of the surfaces of Samples 1-4 with the magnification of 1,000 and 10,000.

실리콘 기판위에 분자선속법으로 성장한 GaAs 에피층



Sample 3

Sample 4

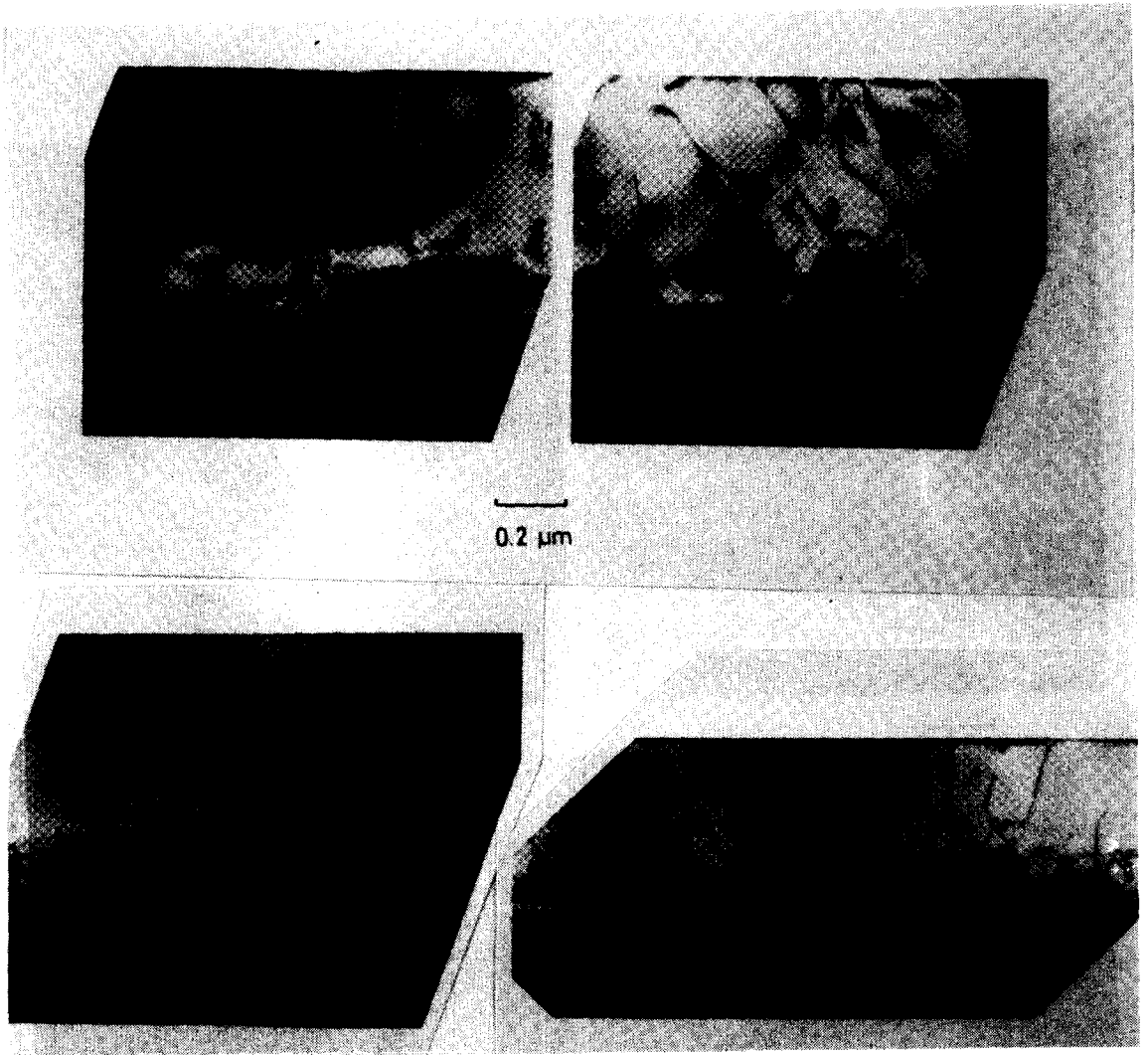


Fig. 3. TEM pictures of cross-section of Sample 2 at various spots : The top two and the bottom left are magnified 50,000 times, and the bottom right 30,000 times.

생장한 에피층에서는 생장이 진행되면서 dislocation density가 줄어드는 경향이 있음이 알려져 있다 [10]. 결함이 적은 시료 3과 4의 단면 조사를 시도하였으나 TEM관측을 위한 시료 준비과정(얇은 단면을 만드는 것)에서 실패하였다.

그러나, 시료 2와 3의 결정 상태를 double-crystal X-ray diffraction 방법으로 비교 조사

를 시도하였으며, 결과가 Fig. 4에 소개되어 있다. 관측한 격자상수는  $5.647\text{\AA}$ 이고, 시료 3에서의 편차는  $0.013\text{\AA}$  ( $315\text{ arcsec}$ )이다. 이 값은 이미 보고된 다른 연구 결과와 잘 일치한다 [6,18-22]. 시료 2와 3의 회절 무늬의 선폭을 비교하여 보면, 시료 3이 시료 2보다 좁게 나타난 결과를 보이고 있다. 이는 두 시료의 에피층의 두께의 차이에 기인되는 부분도 있겠

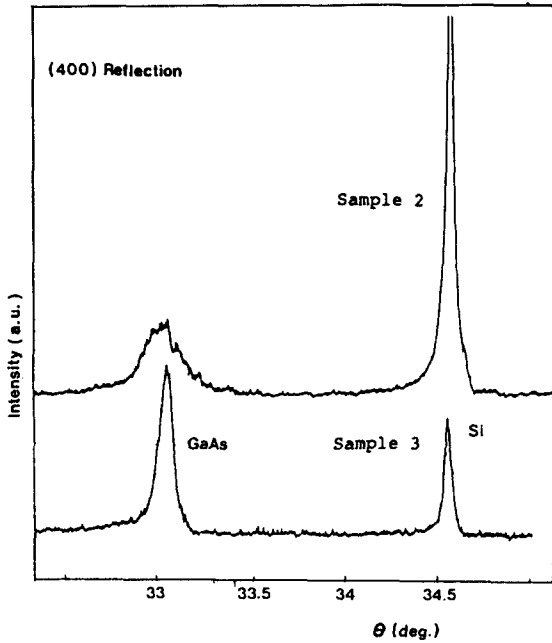


Fig. 4. Double-crystal X-ray diffraction patterns of Sample 2 and 3.

나, 결정 상태의 차이에 기인하는 부분도 있으리라고 생각되며, 따라서 시료 2가 시료 3보다 결정성이 더 좋은 시료라고는 사료되지 않는다.

위의 4가지 분석 결과를 종합하여 보면, 시료 4에 가장 좋은 결정성을 갖는 에피층이 성장되었다고 판단된다.

시료 3과 4를 van der Pauw 방법을 써서 온도 변화에 따르는 Hall 효과와 전기 비저항을 측정한 결과를 종합하여 보면, 이들 시료는 약  $3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ 의 carrier concentration을 갖는 n-type으로, 비저항은 실온에서 약 0.1 Ohm-cm로, 같은 carrier concentration을 갖는 Si-doped homoepitaxial GaAs보다는 약 3-5배 높은 값이다. 또, Hall mobility는 상온에서는  $1.0 \times 10^3 \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ , 액체 질소 온도에서는  $3.5 \times 10^3 \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ 로 같은 carrier concentration을 갖는 Si-doped homoepitaxial GaAs보다는 약 1/2-1/3 낮은 값이다.

또, 시료 3과 4의 PL를 10K의 온도에서 구하여 같은 carrier concentration을 갖는 Si-doped homoepitaxial GaAs와 비교한 결과가 Fig. 5에 있다. Homoepitaxial GaAs의 경우 1.

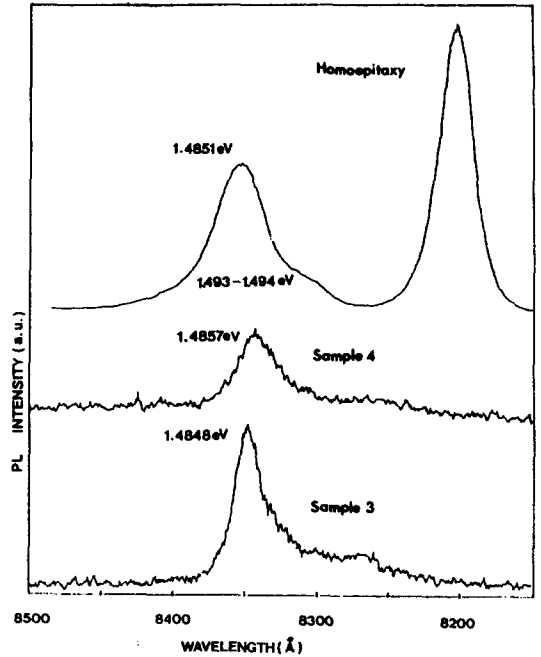


Fig. 5. Photoluminescence spectra of Samples 3 and 4 at 10K obtained with the excitation of Ar-ion Laser. That of Si-doped homoepitaxial GaAs of the same doping concentration is listed for comparison.

512eV 근처에 exciton에 관련된 가장 추가되는 PL peak가 나타나는 반면에, 두 MGS시료에서는 이 peak가 관측되지 않았다. 시료 3과 4의 경우 1.485eV 부근에서 뚜렷한 PL peak가 나타나는데, 이 peak는 homoepitaxial GaAs에서의 conduction band에서 Si acceptor로 전자가 전이하면서 방출하는 PL peak에 해당하는 광전자 에너지 값과 오차 범위 내에서 일치한다. 이는 성장한 시료 3과 4가 실리콘으로 unintentionally doping되어 있다는 결론이 되



며, 이 PL결과는 앞에 보고한 Hall 측정 결과, 즉 n-type으로 doping되어 있다는 결론이 되며, 이 PL결과는 앞에 보고한 Hall 측정 결과, 즉 n-type으로 doping되어 있다는 결과와 일관성을 갖고 있다. 그러나, 같은 carrier concentration의 homoepitaxy시료는 exciton bound된 PL peak를 보여주는 반면, 시료 3과 4에서는 이에 해당하는 peak를 볼 수 없었던 것은 MGS의 optical 특성이 아직은 homoepitaxial GaAs만큼 좋지는 못함을 알 수 있다.

#### 4. 토 론

GaAs 에피층을 실리콘 기판위에 성장할 때, 실리콘 기판을 (100) 면에서 [011] 방향으로 약 3° 기울여 절삭한 것을 서서 격자 상수가 비슷하게 하여 주는 것이 좋으며, 또 이 단계 성장법 즉 낮은 온도에서 nucleation layer를 성장한 후 active layer를 성장하는 것이 바람직하다는 것 등 성장의 최적조건을 확인하였다. 또, nucleation layer 다음에 multi-quantum well과 같은 비등방성 구조를 삽입하여 stress 효과를 분산시키면 결정성이 향상됨을 알 수 있었다. 한편, PL, Hall 효과 등의 분석을 통하여 heteroepitaxial layer에 실리콘이 저질로 doping된다는 것도 확인하였다.

성장한 MGS는 물성면에서는 별로 손색이 없는 것으로 사료되나, 결정 결함의 밀도 등 결정구조면에서 볼 때 아직도 개선의 여지가 있다고 사료된다. 특히 광전 소자에 활용할 수 있는 품질의 MGS를 만들기 위하여서는 많은 노력이 필요하다고 생각된다.

#### 알리는 말씀

본 연구에 도움을 주신 금동화 박사와 과학기술원 전자현미경실, 민석기 박사, 서울대학교 생산기술연구소 전자현미경실에 감사를 드립니다. 이 연구는 과학기술처 지원으로 이루어졌습니다.

#### 참고문헌

- [1] T. C. Chong and C. G. Fonstad, *J. Vac. Sci. Technol.*, B5 (1987) 815.
- [2] W. I. Wang, *Appl. Phys. Lett.*, 44 (1984) 1149.
- [3] R. Hull, S. J. Rosner, S. M. Koch and J. S. Harris, Jr., *Appl. Phys. Lett.*, 49 (1986) 1714.
- [4] D. K. Biegelsen, F. A. Ponce, A. J. Smith, and J. C. Tramontana, *J. Appl. Phys.*, 61 (1987) 1856.
- [5] J. W. Lee and H. L. Tsai, *J. Vac. Sci. Technol.*, B5 (1987) 819.
- [6] W. M. Duncan, J. W. Lee, R. J. Martyi and H-Y. Lim, *J. Appl. Phys.*, 59 (1985) 2161.
- [7] G. M. Metzger, H. K. Choi and B-Y. Tsauro, *Appl. Phys. Lett.*, 45 (1984) 1107.
- [8] N. Chand, J. Allam, J. M. Gibson, F. Capasso, F. Beltram, A. T. Macrander, A. L. Hutchinson, L. C. Hopkins, G. G. Bethea, B. F. Levine and Y. Cho, *J. Vac. Sci. Technol.*, B5 (1987) 822.
- [9] D. E. Aspnes and J. Ihn, *J. Vac. Sci. Technol.*, B5 (1987) 939.
- [10] R. Fischer, D. Neuman, H. Zabel, H. Zabel, H. Morkoc, C. Choi and N. Otsuka, *Appl. Phys. Lett.*, 48 (1986) 1223.
- [11] N. Otsuka, G. Choi, Y. Nakamura, S. Nagakura, R. Fischer, G. K. Peng and H. Morkoc, *Appl. Phys., Lett.* 49 (1986) 277.
- [12] C. Nozaki, S. Naritsuka, Y. Kokubun and S. Yasuami, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 27 (1988) L293.
- [13] T. Udea, S. Nishi, Y. Kawarada, M. Akiyama and K. Kaminishi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 25 (1986) L789.
- [14] S. J. Rosner, S. M. Koch and J. S. Harris, Jr., *Appl. Phys. Lett.*, 49 (1986) 1764.
- [15] W. I. Wang, *J. Vac. Sci. Technol.*, B3

- (1985) 552.
- [16] M. Kawabe and T. Ueda, Jpn. J. Appl. Phys., 26 (1987) L944.
- [17] B-Y. Tsaun and G. M. Metze, Appl. Phys. Lett., 45 (1984) 535.
- [18] D. A. Neuamnn, Xiaomei Zhu, Zabel, T. Henderson. K. Fisher, W. T. Masselink, J. Dlem, G. K. Peng and H. Morkoc, J. Vac. Sci. Technol., B4 (1986) 642.
- [19] W. Stoltz, F. E. G. Guimaraes, and K. Ploog, J. Appl. Phys., 63 (1988) 492.
- [20] N. Lucas, H. Zabel, H. Morkoc, and H. Unlu, Appl. Phys. Lett., 52 (1988) 2117.
- [21] 김현수, 김용, 김무성, 민석기, 응용물리 1, (1988) 212.
- [22] 강태원, 홍치유, 김영함, 김득녕, 오용탁, 임재영, 새물리, 30 (1990) 295.