

Liquid-Phase Epitaxy로 성장시킨 $Al_xGa_{1-x}As(x \leq 0.15)$ 의 Photoreflectance.

논문
7-4-4

Photoreflectance of $Al_xGa_{1-x}As(x \leq 0.15)$ Grown by Liquid-Phase Epitaxy.

배인호*, 김인수*, 이철욱*, 최헌태*, 김말문*, 김삼기**
(In-Ho Bae, In-Soo Kim, Chul-Wook Lee, Hyun-Tae Choe, Mal-Moon Kim, Sang-Gi Kim)

Abstract

We determined the alloy composition of the liquid-phase epitaxy(LPE) grown $Al_xGa_{1-x}As$ by the photoreflectance(PR), and observed the variation of PR signal by changing the condition of annealing and thickness of epilayer. As the measuring temperature was decreased, the broadening parameter was decreased, and the amplitude of PR signal was increased. When the temperature of annealing was increased, the surface carrier concentration was decreased and then the shape and amplitude of PR signal were affected by the surface electric field. The structure change was observed when the specimen was annealed for long time at a high temperature. We found that the surface electric field increased when the thickness of epilayer was decreased by etching, because the band bending was increased by the decreased of the width of depletion layer.

Key Words(중요용어) : $Al_xGa_{1-x}As$, Photoreflectance, Franz-Keldysh oscillation, Surface electric field (표면전장).

1. 서 론

변조 분광학(modulation spectroscopy)^{1,2)}은 측정 장치나 시료의 광학 상수에 변화를 주어 그 변화에 따른 투과율이나 반사율의 변화를 측정하는 것으로 물질의 전기 및 광학적 성질을 분석하는데 매우 유용한 기구이다. 측정 장치나 시료의 광학 상수에 변화를 주는 변조원(modulation source)으로는 압력, 온도, 파장, 자기장, 전기장, 그리고 빛(photon)등이 있다. 이들 중에서 전기장을 변조원으로 사용하는 것을 electroreflectance(ER)³⁾라 하고, 빛 즉, 포톤을 변조원으로 사용하는 것을 photoreflectance(PR)^{4,5)}라 한다. 이들은 모두 절대 반사율 스펙트럼의 3차 미분형 스펙트럼을 나타내며, 상온에서도 예리하고 고분해능의 스펙트럼을 얻을 수 있다는 장점을 지니고 있다. ER의 경우 전기장을 변조원으로 이용하기 위해서는 전극을 만들어

야 하는데, 박막 구조나 초격자 구조에 전극을 형성하기는 용이하지 않으며 또한 전극 형성 과정이나 변조 과정에서 표면 구조가 파괴되는 경우도 생긴다. 그러나 PR은 전극을 만들 필요가 없으므로 시료의 준비 과정이 간단하고 비파괴 측정이 가능한 것이 장점이다. 이러한 PR 측정으로 GaAs나 AlGaAs의 결정성 평가, 밴드-갭 에너지 측정, 함금의 조성비 및 시료의 도핑 농도 등을 정확하게 얻을 수 있다.⁶⁻⁹⁾

본 연구에서 liquid phase epitaxy(LPE)로 $Al_xGa_{1-x}As$ 를 성장하여 주로 상온에서 PR 측정을 수행하였다. 측정된 PR 신호를 최소자승법으로 fitting하여 성장시킨 에피층의 조성비를 결정하였다. 또한 측정 온도의 변화와 시료의 에칭을 통하여 에피층의 두께에 따른 PR 신호의 변화를 관찰하고 이 측정을 통하여 두께에 따른 표면 전장의 변화를 살펴보았으며, 열처리에 따른 PR 신호의 변화도 관찰하였다.

2. 실험

본 연구에 사용된 시료는 LEC(liquid-encapsul-

* : 영남대학교 물리학과

** : 한국전자통신 연구소

접수일자 : 1993년 12월 13일

심사완료 : 1994년 4월 30일

ated Czochralski)법으로 성장된 반절연성 GaAs (100) 기판 위에 1 μ m의 완충층 GaAs를 성장시키고 그 위에 다시 1 μ m 두께의 불순물을 첨가하지 않은 Al_xGa_{1-x}As 층을 성장시켜 사용하였다. 성장된 Al_xGa_{1-x}As 시료들의 상온 PR 측정 후, 측정 온도 의존성(80-330K), 열처리 온도 및 시간 변화와 에칭에 의한 시료 두께에 따른 PR 측정을 수행하였다. 에칭 용액은 H₂SO₄:H₂O₂:H₂O(1:1:8)를 사용하였으며, 에칭 후 시료의 두께는 scanning electron microscopy(SEM)로 측정하여 확인하였다.

PR 측정 장치의 개략도는 Fig. 1에 나타내었다. 변조원으로 2mW He-Ne 레이저(632.8nm)를 사용하였으며, 변조원의 주파수는 광단속기를 이용하여 130Hz로 하였다. 또한 probe광원은 1000W의 텅스텐 램프로부터 초점 거리가 0.25m인 분광기를 통하여 단색화시키고, 분광기를 통과한 단색광을 시료에 집속시켜 시료로부터 반사된 빛을 p-i-n 실리콘 포토다이오드로 검출하였다. 포토다이오드에 검출된 신호는 lock-in amplifier를 통해 증폭하여 intensity로 하고 분광기의 파장을 에너지로 하여 PC에 기록하였다.

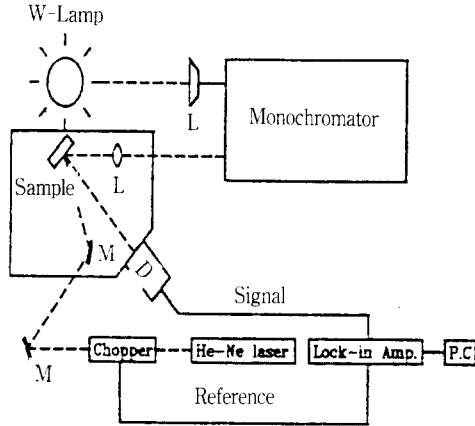


그림 1. PR 측정 장치의 개략도.
Fig. 1. Schematic diagram of PR measurement.

3. 실험 결과 및 고찰

Fig. 2는 기판으로 사용된 LEC법으로 성장된 반절연성 GaAs와 LPE법으로 조성별로 성장시킨 Al_xGa_{1-x}As 시료의 상온에서 PR을 측정한 결과이다.

일반적으로 PR 스펙트럼에서 Franz-Keldysh oscillation(FKO) 피크가 관찰되지 않을 경우 측정

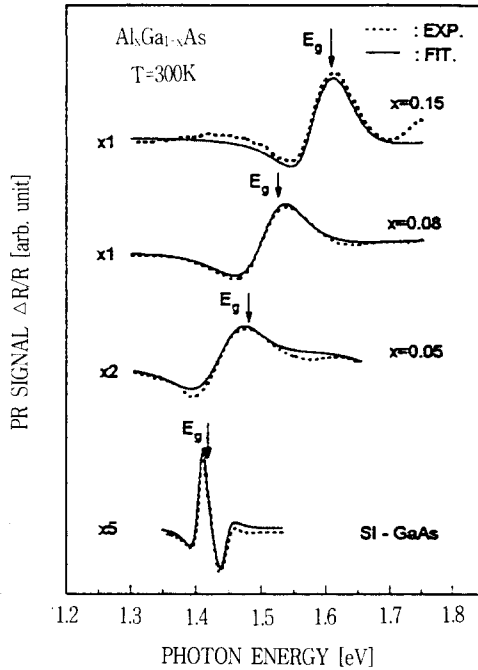


그림 2. 반절연성 GaAs와 LPE법으로 성장시킨 Al_xGa_{1-x}As에 대한 300K에서 PR 신호.
Fig. 2. PR signals at 300K for semi-insulating GaAs and Al_xGa_{1-x}As grown by LPE.

된 PR 스펙트럼은 Aspnes³⁾에 의해 개발된 3차 미분형의 함수인 아래 식의 형태로 나타낼 수 있다.

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re}[C e^{i\theta} (E - E_g + i\Gamma)^{-n}] \quad (1)$$

여기서 C는 진폭, θ 는 위상, E_g 는 밴드-갭 에너지, Γ 는 평탄인자(broadening parameter), E는 포논의 에너지를 나타낸다. 또한 n은 임계점의 형태에 따라 주어지는 값으로 엑시톤, 3차원의 밴드갭 천이 및 2차원의 밴드갭 천이에 대해 각각 n=2, 2.5, 3의 값을 가진다. 따라서 식(1)을 이용하여 실험 결과를 fitting하면 밴드-갭 에너지, 평탄인자 및 스펙트럼에서 천이의 형태를 알 수 있다. 그림에서 점선은 측정된 값들을 나타내고 실선은 식(1)에 의해 n=2.5를 사용하여 최소자승법으로 fitting하여 구한 결과를 나타낸 것이다. Fitting 결과들로부터 GaAs 및 성장된 AlGaAs의 밴드-갭 에너지는 각각 1.419eV, 1.483eV, 1.532eV, 및 1.609eV 이었고, AlGaAs의 조성비는 각각 0.05, 0.08, 0.15이었다. 그리고 평탄인자 Γ 는 GaAs에서 16.9meV와 AlGaAs에서 92meV, 77.4meV, 및 50.6meV의 값을 얻었다. 여기서 반절연성 GaAs보

다 성장된 AlGaAs 의 γ 값이 더 큰 이유는 성장된 AlGaAs 에피층이 기판보다 결정성이 나쁘기 때문이다^{6,7)}.

Fig. 3은 조성비가 0.08인 AlGaAs 시료에 대해 PR 측정 온도를 변화시키면서 측정한 결과를 나타내었다. 이 그림에서 120K까지는 저온으로 갈수록 PR 신호의 진폭이 증가하다가 80K에서는 다시 감소되는 것을 볼 수 있으며, 평탄인자 γ 는 저온으로 갈수록 작은 값을 가진다는 것을 알 수 있다^{10,11)}. 일반적으로 온도 감소는 표면 상태에 존재하는 캐리어의 농도를 감소시키고, 이로 인하여 표면 전장이 감소되어 PR 신호의 진폭이 감소하게 된다. 그러므로 온도 감소에 따라 평탄인자가 감소한 것은 온도 감소로 인한 표면 전장의 감소 때문이다¹²⁾. 한편 120K까지 온도 감소에 따라 PR신호의 진폭이 증가하는 것은 온도 감소에 의한 표면 전장의 감소보다 광흡수 효율의 증가가 더 크게 나타났기 때문이다.

Fig. 4는 조성비가 0.08인 AlGaAs 시료를 500, 600, 700 및 800°C에서 5분간 열처리한 뒤 측정된

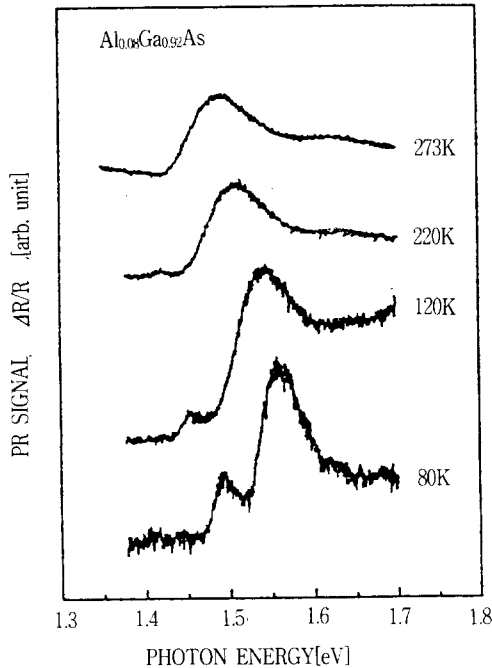


그림 3. $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{As}$ 시료에 대한 PR신호의 온도의존성.

Fig. 3. Temperature dependence of the PR signals for the $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{As}$ sample.

PR 결과를 나타낸 것이다. 500°C로 열처리된 시료의 경우 1.53eV 부근의 신호가 지배적으로 관측되

었으며 AlGaAs 밴드-갭 에너지 이상의 영역에서 관측된 미약한 신호는 FKO에 의한 피크이다. 600°C로 열처리된 시료에서는 밴드-갭 에너지 부근의 신호의 진폭이 감소되면서 FKO 피크의 위치가 저에너지 쪽으로 이동되는데 이것은 열처리 온도의 증가에 따라 표면에 존재하는 캐리어의 농도가 감소하였기 때문이다¹³⁾. 700°C로 열처리한 시료에서는 600°C로 열처리한 시료의 경우 보다 PR 신호의 진폭이 커지면서 평탄인자가 작은 예리한 신호를 관측할 수 있는데 이것은 이 온도에서 열처리된 시료의 경우 표면에 존재하는 캐리어의 수가 감소하여 평탄인자가 작은 예리한 피크를 관측할 수 있고 진폭이 더 커진 것은 결정성이 좋아졌기

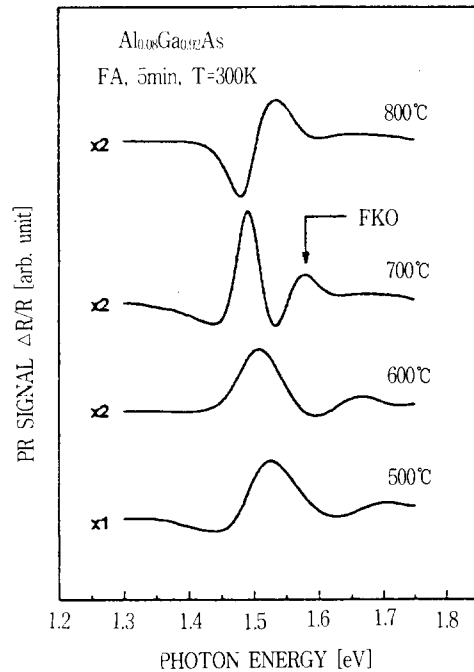


그림 4. 500°C, 600°C, 700°C 및 800°C Ar 분위기에서 5분동안 열처리시킨 $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{As}$ 시료에 대한 300K에서 PR 신호.

Fig. 4. PR signals at 300K for the $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{As}$ sample after furnace annealing in Ar ambient at 500°C, 600°C, 700°C, and 800°C for 5 min.

때문이다. 800°C로 열처리된 경우 신호가 다시 완만해지고 밴드-갭 이상에서 나타난 FKO 피크가 사라짐을 볼 수 있다. 이는 열처리 온도의 증가로 결정성이 나빠지기 때문이다.

Fig. 5은 조성비가 0.15인 시료의 성장 온도 즉, 795°C에서 각각 10, 30, 60 및 120분 동안 열처리하

여 측정된 PR결과를 나타낸 것이다. 10분과 30분 동안 열처리한 시료에서 1.61eV의 AlGaAs 신호가 지배적으로 나타났으며, 특히 30분 열처리한 시료에서는 미약하지만 1.42eV 부근의 GaAs 신호가 관측되었다. 60분 열처리한 시료에서는 AlGaAs 신호의 크기가 급격히 줄어들었고 GaAs 밴드-갭 부근에 복잡한 형태의 신호들이 관찰되었다. 또한 GaAs 밴드-갭 에너지와 AlGaAs 밴드-갭 에너지 사이의 완만한 형태들도 관찰된다. 이러한 신호는 Sydor 등¹⁴⁾에 의해 보고된 것처럼 AlGaAs 에피층 위에 얇은 GaAs의 cap을 성장시킨 경우 전체 스펙트럼을 왜곡시키려는 결과와 상당히 일치함을 알 수 있다. 이러한 원인은 AlGaAs/GaAs interface의 간섭에 의한 영향으로 보고되었으며, 따라서 고온에서 장시간 열처리된 시료는 Al이 내부로 확산되고 표면에 얇은 GaAs층이 형성됨을 추정할 수 있다.

120분간 열처리한 시료의 경우 AlGaAs의 신호는 사라지고 GaAs에 의한 신호들만 복잡하게 관측되었는데 이는 장시간 열처리로 인해 cap GaAs

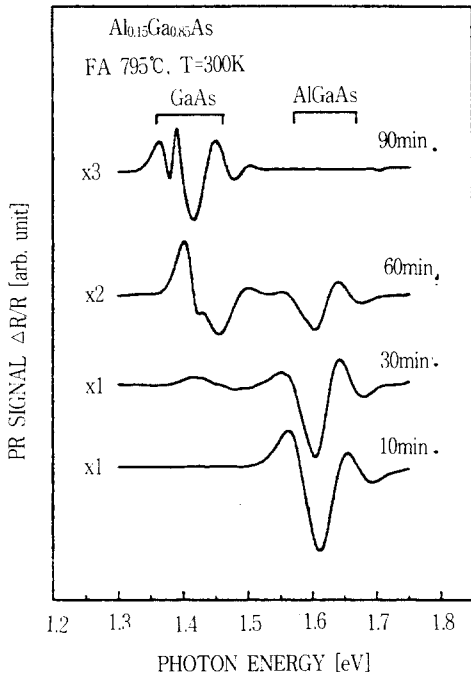


그림 5. 750°C Ar 분위기에서 10, 30, 60 및 90분 동안 열처리시킨 $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ 시료에 대한 300K에서 PR 신호.

Fig. 5. PR signals at 300K for the $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ sample annealed in Ar ambient at 795°C for 10, 30, 60, and 90 min.

층이 더 두꺼워지고 또한 AlGaAs 에피층의 파괴로 인해 신호는 복잡한 형태로 나타나게 된다.

Fig. 6는 조성비가 0.15인 AlGaAs 시료를 두께에 따라 측정된 PR 결과이다. 에칭을 하지 않은 시료에서는 1.61eV 부근의 AlGaAs 신호만이 관측

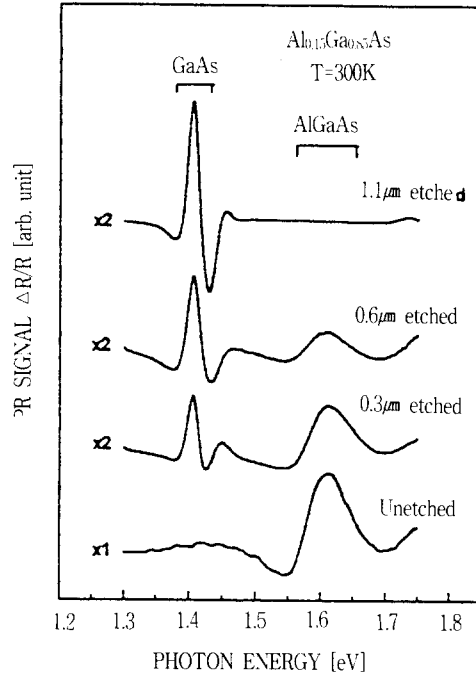


그림 6. 에칭 두께에 따른 $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ 시료에 대한 300K에서 PR 신호.

Fig. 6. PR signals at 300K for the $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ sample as a function of etched thickness.

되었다. AlGaAs 에피층의 두께를 감소시킴에 따라 AlGaAs 신호의 크기는 점차로 감소하였고, 1.42eV 부근의 GaAs에 의한 신호가 뚜렷하게 관찰되었다. 이때 관찰된 GaAs의 신호는 AlGaAs 에피층 밑에 존재하는 GaAs 완충층으로부터 발생된 것이다¹⁴⁾. 그리고 1.1 μm 를 에칭한 시료에서는 AlGaAs 신호는 관측되지 않았는데 이는 성장된 AlGaAs 에피층의 두께가 1 μm 로서 이 시료에서는 AlGaAs 에피층이 모두 에칭되어 제거되었기 때문이다.

또한 AlGaAs 에피층의 두께가 감소함에 따라 피크의 진폭이 감소하는 것은 시료내 공핍층의 폭이 점차로 감소하기 때문이다. PR 측정에서 FKO 피크에 대해 밴드-갭 에너지와 표면 전장은 Bhat-tacharya¹⁵⁾에 의해 주어졌던 것처럼

$$E_j = \hbar\Omega(F_j) + E_g, \quad j=1, 2, 3, \dots \quad (2)$$

$$F_j = [3\pi(j-1/2)/2]^{(2/3)} \quad (3)$$

에 의해 구해질 수 있다. 여기서 E_j 는 임계점의 에너지, j 는 FKO 피크의 순서를 나타내는 정수이고, $\hbar\Omega$ 는 임계점과 관련된 특정에너지로서

$$\hbar\Omega = (e^2 E_s^2 \hbar^2 / 8\mu) \quad (4)$$

으로 주어진다. 여기서 E_s 는 표면 전장을 나타내고 μ 는 밴드간 환산 질량이다. 식 (2)와 (3)으로부터 F_j 에 대한 E_j 의 그래프를 그리면 기울기가 $\hbar\Omega$ 이고 교차점이 E_g 인 직선을 얻을 수 있다. Fig. 7은 측정된 PR 결과를 식 (2)와 (3)에 의해 그린 그림이다. 이 그림과 식 (4)를 이용하여 구한 표면 전장의 세기는 $0.3\mu\text{m}$ 에칭된 시료에서 $5.9 \times 10^5 \text{V/cm}$ 이었고 $0.6\mu\text{m}$ 에칭된 시료에서는 $1.1 \times 10^6 \text{V/cm}$ 로 시료의 두께가 감소됨에 따라 표면 전장의 세기가 증가함을 알 수 있다.

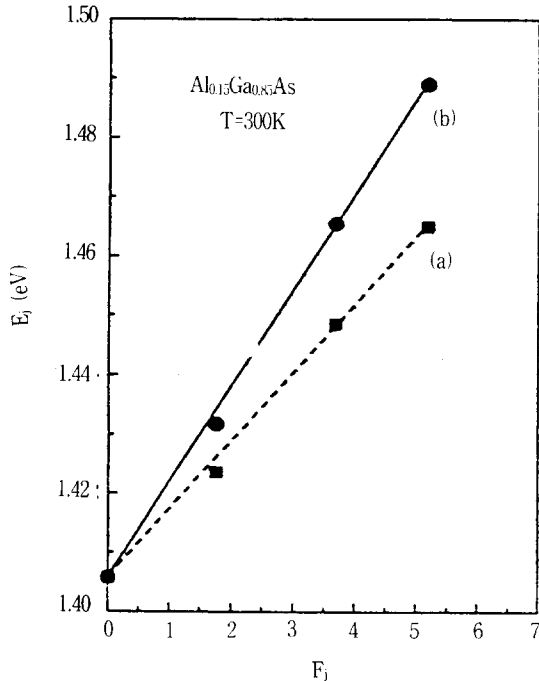


그림 7. FKO 피크 에너지 E_j 와 F_j [Eq.(3)]의 관계. 시료의 에칭된 두께는 (a) $0.3\mu\text{m}$ 및 (b) $0.6\mu\text{m}$.

Fig. 7. Relation between FKO peak energy E_j vs F_j [Eq.(3)]. The etched thickness are (a) $0.3\mu\text{m}$ and (b) $0.6\mu\text{m}$.

4. 결 론

LPE로 성장된 AlGaAs의 조성비, 열처리 및 두께에 따른 PR 특성을 조사하였다. 조성에 따라 측정된 PR 신호를 fitting하여 그 조성비가 0.05, 0.08, 0.15의 값을 구하였다. 측정 온도(80-300K)를 변화시켜 측정한 결과와 열처리 온도 및 시간을 변화시켜 측정한 결과로부터 PR신호의 형태와 진폭은 표면 전장에 크게 영향을 받는다는 것을 알았다. 특히 고온에서 장시간 시료를 열처리한 결과 시간이 증가함에 따라 시료의 구조가 변화됨을 PR 측정을 통해 알았다. 또한 에치층의 두께에 따른 실험을 통하여 두께가 얇아짐에 따라 표면 전장이 증가하였는데 이는 공핍층 폭의 감소로 표면에서 밴드의 휨이 커졌기 때문이다.

5. 참고 문헌

1. T.S. Moss, *Handbook on Semiconductor*, Vol. 2 North-Holland, Amsterdam, pp. 110-154 (1980).
2. M. Erman, J.B. Teeten, P. Frijlink, S. Galland, F.J. Hia and C. Alibert, "Electronic states and thickness of GaAs/AlGaAs quantum wells as measured by electroreflectance and spectroscopic ellipsometry", *J. Appl. Phys.*, Vol. 56, pp.3241-3249(1984).
3. D.E. Aspnes and A.A. Studna, "Schottky-barrier electroreflectance: Application to GaAs", *Phys. Rev.*, Vol. B7, pp.4605-4625 (1973).
4. R.E. Nahory and J.L. Shay, "Reflectance modulation by the surface field in GaAs.", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 21, pp.1569-1571(1968).
5. J.L. Shay, "Photorefectance line shape at the fundamental edge in ultrapure GaAs.", *Vol. B2*, pp.803-807(1970).
6. D. Haung, G. Ji, U.K. Reddy, H. Morkoc, F. Xiong and T.A. Tombello, "Photorelectance, absorption, and nuclear resonance reaction studies of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ grown by molecular-beam epitaxy.", *J. Appl. Phys.*, Vol. 63, pp. 5547-5453(1988).
7. M. Sydor, J. Angelo, W. Mitchel, T.W. Hass, and Ming-Yuan Yen, "Photorelectance measurements of unintentional impurity concentrations in undoped GaAs.", *J. Appl. Phys.*, Vol.

- 66, pp.156-160(1989).
8. N. Bottka, D.K. Gaskill, R.S. Sillmon, R. Henry, and R. Glosser, "Modulation spectroscopy as a tool for electronic material characterization.", J. Electron. Mater., Vol. 17, pp.161-170(1988).
 9. L. Peters, L. Phaneuf, L.W. Kapitan, and W.W. Theis, "Noncontact doping level determination in GaAs using photoreflectance spectroscopy.", J. Appl. Phys., Vol. 62, pp. 4558-4562(1987).
 10. E.G. Seebauer, "Oxidation and annealing of GaAs(100) studied by photoreflectance.", J. Appl. Phys., Vol. 66, pp.4963-4972(1989).
 11. A. Badakhshan, C. Durbin, R. Glosser, K. Alavi, and R. Pathak, "Photoreflectance characterization of GaAs as a function of temperature, carrier concentration, and near-surface electric field.", J. Vac. Sci. Technol., Vol. B11, pp.169-174(1993).
 12. S. Gopalan, P. Lautenschlager, and M. Cardona, "Temperature dependence of the shifts and broadenings of the critical points in GaAs.", Phys. Rev., Vol. B35, pp.5577-5584 (1987).
 13. R.A. Novellino, A.A. Bernussi, F.H. Pollak, F. Meseger, and K. Ploog, "On the origin of Franz-Keldysh oscillations in AlGaAs/GaAs modulation doped heterojunctions.", J. Appl. Phys., Vol.70, pp.5577-5581(1991).
 14. M. Sydor, N. Jähren, W.C. Mitchell, W.V. Lampert, T.W. Haas, M.Y. Yen, S.M. Mudare, and D.H. Tomich, "Photoreflectance of $Al_xGa_{1-x}As/GaAs$ interfaces and high-electron-mobility transistors.", J. Appl. Phys., Vol.67, pp.7423-7429(1990).
 15. R.N. Bhattacharya, H. Shen, P. Parayanthal, F.H. Pollak, T. Coutts, and H. Aharoni, "Electroreflectance and photoreflectance study of the space-charge region in semiconductors:(In-Sn-O)/InP as a model system." Phys. Rev., Vol. B37, pp.4044-4050(1988).

저자소개

배인호



1949년 10월 13일생. 1973년 2월 영남대학교 물리학과 졸업. 1978년 2월 동 대학원 물리학과 졸업(석사). 1991년 8월 동국대학교 대학원 물리학과 졸업(이박). 현재 영남대학교 물리학과 교수.

김인수



1961년 8월 19일생. 1985년 2월 영남대학교 물리학과 졸업. 1987년 8월 동 대학원 물리학과 졸업(석사). 1994년 2월 동 대학원 물리학과 졸업(이박).

이철욱



1967년 8월 13일생. 1990년 2월 영남대학교 물리학과 졸업. 1992년 8월 동 대학원 물리학과 졸업(석사). 현재 동 대학원 박사과정 재학중.

최현태



1963년 3월 12일생. 1990년 2월 영남대학교 물리학과 졸업. 1992년 2월 동 대학원 물리학과 졸업(석사). 현재 동 대학원 박사과정 재학중.

김말문



1931년 12월 5일생. 1956년 2월 경북대학교 물리학과 졸업. 1960년 2월 동 대학원 물리학과 졸업(석사). 1989년 2월 동 대학원 물리학과 졸업(이박). 현재 영남대학교 교수. 한국물리학회 대구, 경북 지부장.

김상기



1957년 1월 2일생. 1991년 8월 영남대학교 대학원 물리학과 졸업(석사). 현재 동 대학원 박사과정 재학중. 한국전자통신연구소 물성분석실 선임기술원.