

AlN과 저온 GaN 완충층을 이용한 Si 기판상의 후막 GaN 성장에 관한 연구

백호선 · 이정욱 · 김하진 · 유지범
성균관대학교 재료공학과 광전재료 및 소자연구실

Characteristics of Thick GaN on Si using AlN and LT-GaN Buffer Layer

Ho-sun Paek, Jeong-Wook Lee, Ha-Jin Kim and Ji-Beom Yoo

Department of Materials Engineering, Sungkyunkwan University.

Optoelectronic Materials and Device Lab. 300 Chunchun-dong, Jangan-gu, Suwon 440-746

(1999년 4월 3일 받음, 1999년 5월 7일 최종수정본 받음)

초 록 AlN과 저온 GaN 완충층을 이용하여 Si 기판 위의 후막 GaN의 성장특성을 조사하였다. Si와 GaN의 격자부정합도와 열팽창계수의 차이를 줄이기 위해 AlN과 저온 GaN을 완충층으로 사용하였다. AlN은 RF sputter를 이용하여 증착온도와 증착시간 및 RF power에 따른 표면 거칠기를 AFM으로 조사하여 최적조건을 확립하여 사용하였다. 또한 저온에서 GaN을 성장시켜 이를 완충층으로 이용하여 후막 GaN의 성장시 미치는 영향을 살펴보았다. 성장온도와 V/III 비율이 후막 성장시 표면특성과 결정성 및 성장속도에 미치는 영향을 조사하였다. 후막 GaN의 표면특성 및 막의 두께는 SEM과 α -step을 이용하여 측정하였으며 결정성은 X-ray Diffractometer를 이용하여 조사하였다.

Abstract We have investigated the growth characteristics of thick GaN on Si substrate with AlN and low temperature GaN buffer layer. The vertical hydride vapor phase epitaxy system with GaCl₃ precursor was used for the growth of GaN. AlN and GaN buffer layer were deposited on Si substrate to reduce the lattice mismatch and the thermal expansion coefficient mismatch between Si and GaN. Optimization of deposition condition for AlN and low temperature GaN buffer layers were carried out. We studied the effects of growth temperature, V/III ratio on the properties of thick GaN. Surface morphology, growth rate and crystallinity of thick GaN were measured using Atomic Force Microscopy (AFM), α -step, Scanning Electron Microscopy (SEM) and X-Ray Diffractometer(XRD).

1. 서 론

GaN는 청색 발광 소자를 비롯한 다양한 광전소자와 보호막 등의 응용을 목적으로 광범위하게 연구되어온 물질이다.^{1~6)} 그러나 현재 이들 소자의 제작을 위한 GaN의 성장은 GaN 성장에 적합한 기판 물질의 부재로 인하여 GaN와 격자상수와 열팽창계수의 차이가 큰 기판을 이용하는 이종에피성장이므로 GaN계 화합물 반도체의 에피성장 및 이를 이용한 소자 제작 상에 어려움이 많을 뿐만 아니라 제작되어진 소자의 성능과 신뢰도에 큰 영향을 준다고 보고된다.⁷⁾ 이에 따라 일반적으로 기판으로 사용 중인 사파이어나 6H-SiC와 같은 이종 기판 위에 저온 성장된 GaN나 AlN을 buffer로 이용하여 GaN을 성장하여 성장된 GaN의 결정성을 향상시키는 방법이 이용되고 있으나, 격자결합 밀도가 $10^8 \sim 10^{10}/\text{cm}^2$ 정도의 높은 값을 갖는다고 보고된다. 높은 격자결합 밀도를 감소시키는 방법으로 ELOG (Epitaxy Lateral Over Growth)⁸⁾를 이용하거나, 빠른 성장속도를 갖는 에피 성장법을 이용하여⁹⁾ 후막 GaN를 성장한 후 Free standing GaN를 제작하고 이를 이용하여 소자구조를 성장하려는 동종에피성장법(homoepitaxy)이 제안되고 있다.

본 연구에서는 현재 후막 GaN 성장 시 많이 사용하는 사파이어 대신 실리콘을 기판으로 사용하여 후막 GaN의 성장특성을 연구하였다. 실리콘은 사파이어에 비해 훨씬 저렴하고 양질의 대면적 기판을 이용할 수 있다는 장점이 있다. 그러나 실리콘 기판 위에 후막 GaN 성장을 수행하기 위해서는 GaN와 Si의 큰 격자 부정합도 및 열팽창계수 차이를 완화시키기 위하여 완충층이 요구되는데, 본 연구에서는 AlN과 저온 GaN을 완충층으로 사용하여 그 특성을 조사하였다. AlN 완충층의 성장은 RF sputtering를 이용하여 수행하였고 성장온도, RF power, 성장시간에 따른 표면특성을 조사하여 최적의 성장조건을 구하였으며, 증착된 AlN 위에 HVPE 시스템을 이용하여 저온에서 GaN를 성장시켜 제 2의 완충층으로 사용하였다. 저온 GaN 성장시 성장온도와 성장시간에 따른 저온 GaN의 표면특성을 조사하고, 이를 최적화하여 후막 GaN 성장 실험을 수행하여 이들 완충층의 영향을 조사 분석하였다.

2. 실험 및 분석방법

GaN 성장에 적합한 기판을 개발하기 위하여 성장속도가 빠른 HVPE 시스템을 자체 제작하였다. Ga의 공급원으로 금속 Ga과 HCl을 사용하는 일반적인 HVPE 시스템에서

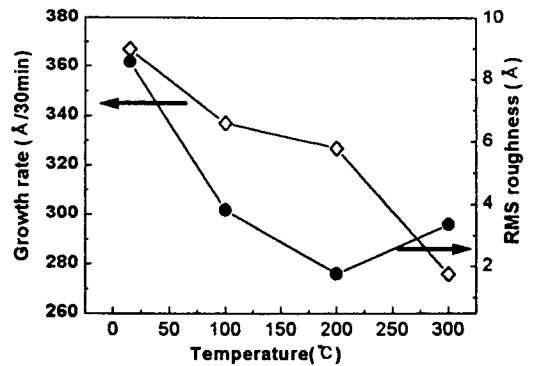
GaCl₃ 형성반응이 기상과 액상간의 반응으로 여러 변수에 의해 영향을 받게되므로 Ga 공급가스의 정밀하고 재현성 있는 공급이 어려우므로, GaCl₃를 직접 bubbling하여 사용하였다. 가스주입부는 Ga 공급원인 GaCl₃의 강한 부식성 때문에 테프론 재질의 라인과 밸브를 사용하였고 NH₃와 N₂ 공급관은 sus재질을 사용하였다. 반응기는 직경 3" 크기의 Quartz tube를 사용하였으며 반응가스인 NH₃와 GaCl₃는 분리되어 동심원의 이중관을 통하여 기관 위로 주입되도록 하였다. NH₃ 주입부와 GaCl₃ 주입부는 서로 위치를 바꿀 수 있게 하였고, 기관과 가스주입 끝단의 거리는 동심원의 이중관을 이동시켜 3~7cm로 변화시킬 수 있도록 하였다. 주입된 가스가 반응기내에서 원활한 흐름을 형성하여 균일한 에피층의 성장을 위해 별도의 질소 가스를 shower head를 통해 주입하였다.¹⁰⁾ 성장 시 정확한 온도 측정을 위해 thermocouple을 susceptor 아래 연결하여 사용하였으며 susceptor는 SiC coating된 graphite를 사용하였다.

Si 기판상의 후막 GaN 성장 실험을 위해 AlN가 증착된 (111) 방향의 Si 기판을 TCE, 아세톤, 메탄올을 사용하여 각각 10분간 유기 세척한 후 사용하였고 시편을 loading한 다음 진공 baking을 600°C까지 수행한 후 반응로에 N₂를 주입, 상압이 되도록 하였다. 저온 GaN의 성장온도가 되면 NH₃ 가스를 GaCl₃ 가스 주입 전 5분간 반응기내로 주입한 후 성장실험을 수행하였다. 후막 GaN의 성장 역시 같은 과정으로 수행하였고 성장이 끝나면 800°C까지 NH₃를 흘려 주었고 N₂가스로 4~5시간 동안 purging하였으며 일정시간이 경과한 후 시편을 꺼냈다.

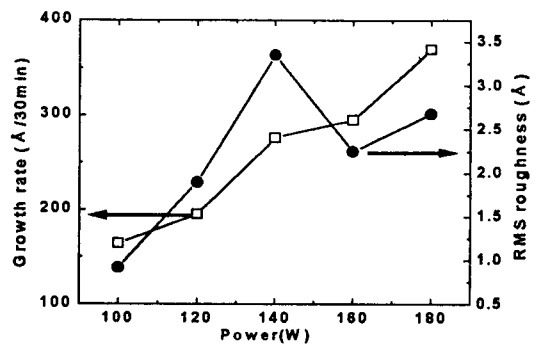
증착되어진 AlN과 성장된 GaN 완충층의 표면특성은 Atomic Force Microscopy를 이용하여 측정하였고 성장속도는 α -step을 이용하여 성장된 두께를 측정하여 조사하였다. AlN과 GaN의 이중 완충층을 이용한 후막 GaN의 성장 특성을 조사하기 위하여 표면형태 및 성장속도는 Scanning Electron Microscopy를 이용하였고, 결정성은 X-ray Diffractometer를 이용하여 조사 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

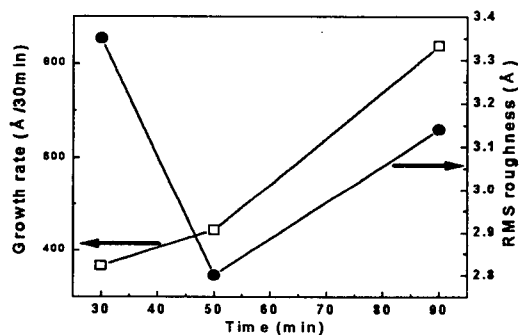
Si 기판을 이용한 후막 GaN의 성장 시 GaN와 Si의 큰 격자 부정합도(16.9%)와 열팽창계수의 차이(37%)로 인하여 GaN를 Si 기판 위에 직접 성장시키는 것은 매우 어렵다. 따라서 본 연구에서는 이러한 격자 부정합도와 열팽창계수의 큰 차이를 줄이기 위하여 AlN을 Si 기판 위에 증착시켜 완충층으로 사용하였다. AlN을 완충층으로 사용하기 위하여 AlN layer를 reactive sputtering을 이용하여 증착하였다. 성장조건은 8.0×10^{-7} torr의 압력을 증착 전 유지하였고 N₂와 Ar의 유량을 각각 4sccm, 10sccm 사용하여 AlN를 증착하였다. 증착된 AlN 완충층의 표면상태와 두께는 성장되는 후막 GaN의 표면특성과 결정성에 큰 영향을 미치므로 AlN 완충층의 최적 증착조건을 조사하였다. 증착온도와 증착시간 그리고 RF power와 같은 공정변수에 따른 영향을 조사하여 AFM으로 표면상태를 측정하였고 증착된 박막의 두께는 α -step을 이용하여 측정하였



(a) Temperature



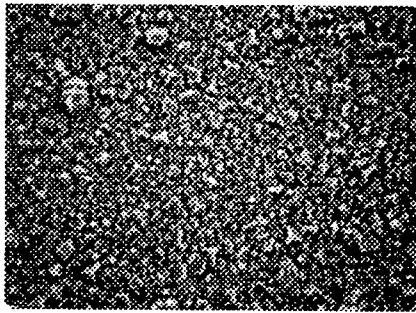
(b) RF power



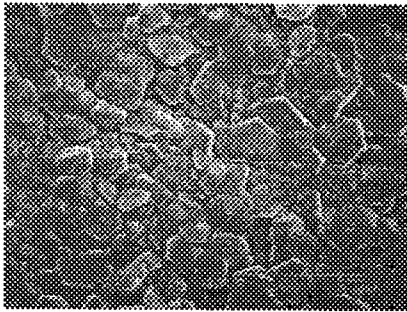
(c) time

Fig. 1. Effects of growth conditions on RMS roughness and thickness of AlN layer. a) temperature, b) RF power, c) growth time.

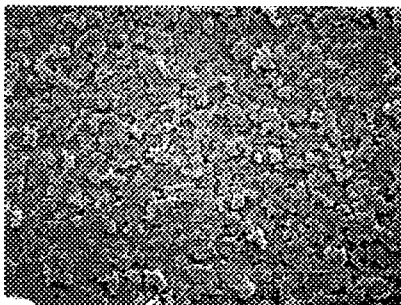
다. 공정조건에 따라 증착되어진 AlN의 증착특성을 그림 1에 나타내었다. RMS roughness와 박막의 두께는 온도가 증가함에 따라 대체적으로 감소하며 200°C에서 가장 낮은 1.76Å의 RMS roughness를 나타내었다.(증착조건 RF power: 140W, 증착시간: 30min) RF power의 변화에 따른 AlN 완충층은 RF power가 100W에서 180W로 증가함에 따라 두께 및 roughness가 증가하는 특성을 나타내었다.(증착조건 온도: 300°C, 증착시간: 30min) 또한 증착시간에 따른 영향을 조사하여 그림 1-(c)에 나타내었다.(증착조건 RF power: 140W, 온도: 300°C) 증착시간이 50분일 경우가 가장 낮은 RMS roughness의 값을 나타내



(a) GaN/Si



(b) GaN/AlN/Si



(c) GaN/LT-GaN/AlN/Si

Fig. 2. Effect of buffer layers on the surface morphology of thick GaN grown on various substrate condition. (a) GaN/Si, (b) GaN/AlN/Si, (c) GaN/LT-GaN/AlN/Si.

었고 증착시간이 증가함에 따라 박막의 두께가 증가하였다. 후막 GaN 성장 실험에서는 AlN의 두께와 표면 roughness 및 시스템의 안정성을 고려하여 200°C의 증착온도와 120W의 RF power 그리고 증착시간이 40분을 최적조건으로 구하였고 이때의 AlN 완충층은 3.61 Å의 RMS roughness 값과 350~400 Å의 두께를 나타내었다.

후막 GaN의 성장조건은 GaCl₃, NH₃, balance gas N₂의 유량을 각각 200sccm, 800sccm, 2500sccm으로 하였으며, 성장온도는 925°C로 하였다. 성장된 후막 GaN의 표면특성을 그림 2-(b)에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 AlN 완충층을 이용한 후막 GaN는 그림 2-(a)의 Si 기판상에 직접 후막 GaN를 성장시킨 것에 비해 매우 향상된 표면특성을 보이고 있다. 즉, Si 기판상에 직접 후막 GaN를 성장시킨 그림 2-(a)의 경우 GaN가 육각정의 결정형태를 가지지 못하는 반면 그림 2-(b)의 경우 비록 2

차원적인 측면성장을 이루진 못하여도 시편 전체에서 균일하게 5~10µm 정도의 크기를 가진 GaN 결정형태들을 볼 수 있었다. 위의 실험 결과에서 볼 수 있듯이 Si 기판 상에 직접 GaN를 성장하는 경우보다 완충층으로 AlN 박막을 사용한 후막 GaN의 표면이 크게 향상됨을 알 수 있었다. 그러나 성장되어진 후막 GaN는 기판으로 사용하기에는 표면상태가 좋지 못하여 AlN/Si 위에 HVPE를 이용하여 GaN를 저온에서 성장시킨 후 이를 후막 GaN 성장 시 완충층으로 이용하여 저온 GaN 완충층의 영향을 조사하였다.

저온에서 성장된 GaN가 비록 단결정으로 성장되지는 않지만 성장시키려는 후막 GaN와 격차 부정합도나 열 팽창 계수의 차이가 없으므로 완충층으로서의 역할을 충분히 할 수 있을 것으로 판단되며, 이미 MOCVD를 이용한 GaN의 성장 시 그 유용성이 증명된 바 있다. GaN buffer층의 성장조건 최적화를 위하여 성장온도와 성장시간에 따른 표면 특성을 조사하였다. 그림 3에 GaN buffer층 성장 시 성장온도와 성장시간에 따른 표면 거칠기의 변화를 AFM으로 측정하여 나타내었다. 성장조건은 100sccm의 GaCl₃와 1250sccm의 NH₃ 그리고 3500sccm의 N₂를 사용하였고 주입부 끝단과 시편과의 거리는 4cm였다. 성장온도를 550~700°C로 변화시켜 보았을 때 600°C에서 성장한 저온 GaN buffer층의 RMS roughness가 가장 낮은 값을 가졌고 온도를 600°C로 고정한 후 성장시간을 30초, 60초, 120초로 변화시켰을 때 성장시간이 60초 일 때 가장 낮은 RMS roughness 값을 나타내었다. 30초에서 60초로 성장시간을 증가하였을 때 RMS roughness의 값이 감소하며 다시 120초로 성장시간을 증가시켰을 때 RMS roughness의 값이 증가하는 현상은 600°C에서와 700°C에서 동일하게 나타났다. 이러한 현상의 이유는 아직 명확하게 규명이 되지 못하였지만 이것은 GaN의 성장모델과 관계가 있을 것으로 예상되며 추후 시간에 따른 영향을 더욱 조사하여 원인을 규명해야 할 것이다. 최적화된 GaN buffer층의 조건은 600°C의 성장온도와 60초의 성장시간이었으며 이때의 roughness 값은 47.6 Å 이었다. 보통 일반적으로 사용되는 사파이어 단결정의 RMS roughness 값과 비교할 때 성장되어진 저온 GaN buffer층의 표면상태가 좋지 못함을

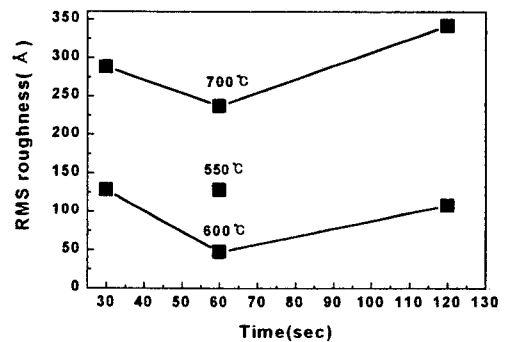


Fig. 3. Variation of RMS roughness of GaN buffer layers with growth temperature at different growth time.

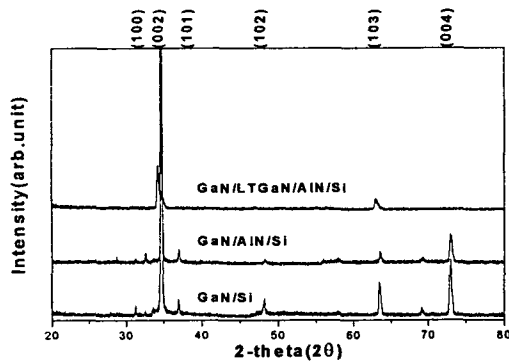
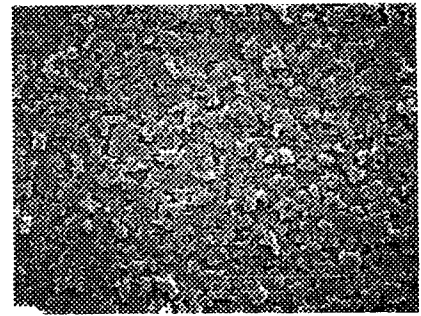


Fig. 4. Crystallinity of thick GaN on Si substrate with/without buffer layers.

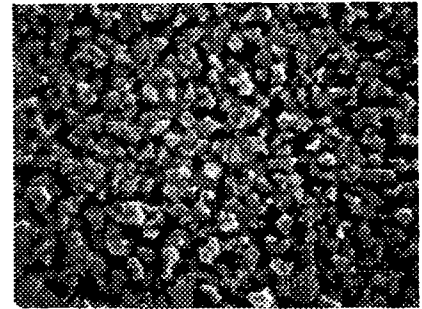
알 수 있다. 그림 2-(c)에 저온 GaN 완충층을 이용한 후막 GaN의 표면형태 특성을 나타내었다. 저온 성장된 GaN buffer층을 이용한 후막 GaN의 성장은 AlN 박막만을 완충층으로 사용한 후막 GaN의 표면(그림 2(b))에 비해 뚜렷한 차이를 보이고 있다. 즉, 3차원 성장이 아닌 근접한 결정들간의 결합이 이루어지는 2차원 성장으로의 성장형태를 가진다. 그림 2에서 Si 기판 위에 이중 완충층인 저온 GaN/AlN을 이용한 후막 GaN의 표면 형태가 Si 기판 위에 직접 또는 AlN만을 완충층으로 이용한 후막 GaN의 표면 형태보다 훨씬 평탄함을 알 수 있었다.

이러한 완충층이 후막 GaN의 결정성에 미치는 영향을 알아보기 위하여 각각의 기판 조건에서 성장되어진 후막 GaN의 결정성을 X-ray diffractometer를 이용, 측정하여 그림 4에 나타내었다. 그림 4에서 Si 기판 상에 직접 후막 GaN를 성장시킨 경우 주 성장면인 (002)면의 peak뿐만 아니라 다른 여러 peak를 관찰할 수 있고 AlN 완충층을 이용한 후막 GaN의 경우도 마찬가지로 여러 peak를 관찰할 수 있어 AlN 완충층만을 사용한 경우 성장된 후막 GaN의 결정성 향상에 큰 영향을 미치지 못함을 알 수 있다. 하지만 저온 GaN와 AlN의 이중 완충층을 이용한 후막 GaN의 경우 주성장면인 (002)면과 (103)면 이외의 다른 peak를 관찰할 수 없었다. GaN가 비록 다결정으로 성장되었지만 이중 완충층에 의해 후막 GaN가 매우 강한 우선 성장면으로 배향되어 성장하였음을 나타낸다. 따라서 HVPE에 의한 후막 GaN의 성장 시 이중 완충층을 사용함으로써 표면형태의 향상과 결정성의 향상이 이루어짐을 알 수 있었다.

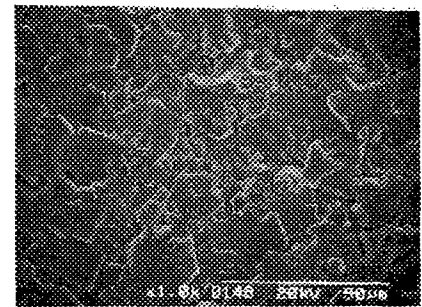
성장온도의 변화에 따른 후막 GaN의 성장특성을 조사하였다. 이때의 성장조건은 GaCl_3 : 200sccm, NH_3 : 800sccm, balance gas N_2 : 2500sccm이었으며 시편과 주입부 끝단과의 거리는 4cm로 고정하였다. 성장온도를 925°C에서 975°C, 1025°C로 증가시키에 따라 성장특성 및 후막의 특성을 조사하였다. 925°C에서 2차원 성장으로 평탄했던 GaN 표면이 975°C에서는 전혀 결정간의 결합이 이루어지지 않는 3차원 형태의 성장모양을 보이고 있으며, 1025°C으로 성장온도를 높였을 경우, 표면에서 10 μm 정도의 큰 결정들이 관찰되었다. 이러한 큰 결정들은 성장초기부터 각각



(a) 925°C



(b) 975°C



(c) 1025°C

Fig. 5. Variation of surface morphology of thick GaN on LT GaN/AlN/Si(111) with growth temperature. (a) 925°C, (b) 975°C, (c) 1025°C.

독립적으로 성장되어 그림 5-(a)에서와 같이 성장된 결정들간의 결합의 형태를 가지는 2차원적 측면성장과는 다른 형태를 가진다.

성장온도가 후막 GaN의 결정성에 미치는 영향을 알아보기 위해 각각의 온도에서 성장된 GaN를 XRD로 측정하여 그림 6에 나타내었다. 그림 6에서 보듯이 성장되어진 후막 GaN의 결정성은 성장온도에 따라 표면형태 변화에서 보였던 현격한 차이를 보이지 않았다. (002)면의 peak 외에 온도와 무관하게 (103)면의 peak이 관찰되었다. 이 peak의 경우 III족, V족의 비율에 의한 것인지 아니면 완충층으로 이용한 AlN 박막과 저온 성장한 GaN 완충층의 결정성 때문에 발견되는 peak인지 판단할 수 없었고 더 자세한 연구를 통해 규명되어야 할 것이다.

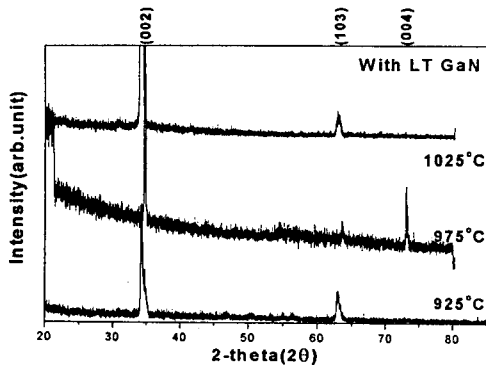


Fig. 6. Effect of growth temperature on crystal quality of thick GaN/LT GaN/AlN/Si.

4. 결 론

AlN 박막을 완충층으로 사용하여 Si 기판 위에 후막 GaN 성장실험을 수행하였다. 증착 시간과 RF power, 온도에 따라 AlN 완충층의 최적조건을 조사하였으며 이때의 RMS roughness 값은 3.61 Å 이었다. AlN/Si 위에 HVPE를 사용하여 저온에서 GaN를 성장시켜 이를 완충층으로 사용하였다. 저온 GaN/AlN/Si를 이용한 후막 GaN 성장에서 성장되어진 GaN의 표면형태가 평탄화 되어지고 결정성도 향상되었다. 이중 완충층을 이용한 후막 GaN의 성장 시 성장온도가 표면형태와 결정성에 미치는 영향을 살펴보았다. 온도를 925°C에서 1025°C까지 변화시켜 보았을 때 925°C에서 가장 평탄한 표면을 얻을 수 있었으나 결정성에는 크게 영향을 미치지 못함을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 선도기술 개발 사업 중 정보 전자 통신용 소재 개발과제를 통하여 지원되었습니다.

참 고 문 헌

1. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, T. Yamada, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys. Lett.*, **34**, L1332 (1995).
2. S. Nakamura, S. Nagahama, Y. Susimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, L74 (1996).
3. H. Amano, S. Sota, T. Tacheguchi, I. Akasaki, '96 MRS Fall Meeting, Dec. Boston U.S.A (1996).
4. J. Kapinski, J. Jun and Poroiski, *J. Crystal Growth*, **66**, 1 (1984).
5. T. Detchprohm, K. Hiramatsu, N. Sawaki and I. Akasaki, *J. Crystal Growth* **137**, 170 (1994).
6. T. Detchprohm, N. Sawaki and I. Akasaki, *J. Crystal Growth* **137**, 170 (1993).
7. S. Strite & H. Morko, *J. Vac. Sci. Tech.* **B10**, 1237 (1992).
8. T. S. Zhekeva, O. H. Nam, M. D. Bremsew and R. F. Davis, Submitted to *Appl. Phys. Lett.* (1997).
9. T. Detchprohm, H. Amano, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 2688 (1992).
10. JeongWook LEE, Hosun PAEK, Jaemin LEE, Taeil KIM, Ji-Beom YOO, 2nd International Conference on Nitride Semiconductor, Tokushima, Japan (1997).