

사파이어 기판 위에 성장된 AlGa_xN 에피층의 광 흡수 특성

김제원* · 박영균 · 김용태 · 최인훈*

한국과학기술연구원, 반도체연구소, 서울 139-650

*고려대학교 재료공학과, 서울 136-701

(1998년 12월 12일 접수)

Characteristic absorbance of AlGa_xN epilayers grown on sapphire substrate

Je Won Kim*, Young K. Park, Yong Tae Kim and In-Hoon Choi

Semiconductor Materials Laboratory, Korea Institute of Science and Technology

P.O. Box 131, Cheongryang, Seoul 130-650, Korea

*Department of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 132-701, Korea

(Received December 12, 1998)

요 약 - 분자선 증착법으로 성장시킨 wurtzite 구조의 AlGa_xN 에피층의 AlN 몰비에 따른 광 흡수 특성을 조사하였다. AlN 몰비는 0에서 1까지 변화시켰으며, 투과 스펙트럼과 photothermal deflection spectroscopy (PDS)를 이용하여 상온에서 흡수 계수를 구하였다. 광 흡수 특성 분석을 위하여 사용된 PDS는 낮은 흡수대에서도 유용하게 적용될 수 있는 장치이다. 투과 스펙트럼과 PDS에 의해 구해진 흡수 계수를 이용하여 AlGa_xN 화합물의 유효띠간격을 결정할 수 있다. 흡수 계수가 $6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 이 되는 지점에서 AlN 몰비에 따른 AlGa_xN 화합물의 유효 띠틈간격이 결정되었다. AlN 몰비에 따른 유효 띠틈간격을 나타내는 그래프에서 휘어짐 계수를 1.3 eV로 정할 수 있었으며 구해진 휘어짐 계수는 AlGa_xN 화합물의 유효 띠틈간격과 잘 부합하였다.

Abstract - The dependence of the absorption edge of wurtzite Al_xGa_{1-x}N on AlN mole fraction has been studied. The AlN mole fraction was varied from 0 to 1. The absorption coefficients at room temperature were determined by transmission and photothermal deflection spectroscopy. Photothermal deflection spectroscopy can be applied to determine the low absorbance values. From the results, the effective bandgaps of Al_xGa_{1-x}N alloys were determined by choosing corresponding photon energies of the positions of the absorption coefficient of $6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ at the absorption curves of the Al_xGa_{1-x}N alloys. From the energy position of the absorption coefficient versus AlN mole fraction, a bowing parameter of 1.3 eV was determined. The bowing parameter agreed quite well with the measured effective bandgaps of AlGa_xN alloys.

1. 서 론

GaN에 기초한 III-V 질화물계 화합물반도체는 고효율, 고효율의 청록색 발광소자(light-emitting diode) 및 청록색 단파장 반도체 레이저(laser diode) 등의 청록색 광소자 응용이 상업화에 성공하면서 큰 주목을 끌고 있는데, 그 외에도 고효율 및 고온소자로의 응용 등으로 폭넓게 적용될 수 있는 물질로서 많은 주목을 받아오고 있다[1-6]. GaN을 위시한 III-V 질화물계 화합물반도체 에피층에서의 광학적으로 여기된 발광에 관한 연구는

자외선 부근 영역에서의 III-V 질화물계 화합물반도체 발광소자 개발에 큰 기여를 해오고 있다[7]. 특히 자외선에서 청색 영역까지의 폭 넓은 스펙트럼 영역을 가지고 있으며 큰 띠틈간격을 갖는 AlGa_xN 화합물은 고효율 소자 및 고온에서 안정된 동작이 가능한 소자에 응용가능하며 표면 음파를 응용한 소자 개발에도 매우 적합한 물질이다. 또한 직접 천이형 띠틈 구조를 가지는 Al_xGa_{1-x}N ($x \geq 0.25$) 구조를 이용하여 자외선 복사 (radiation)에 대한 높은 응답성을 가지는 solar-blind detector를 만들 수 있다. 그러나 약 1 ms의 긴 응답 시간(response time)에

의해 응용에 제한을 받고 있다. 이러한 긴 응답 시간의 주요 요인은 금지된 띠(forbidden band)의 깊은 준위(deep level)에 포획된 다수 나르개(majority carrier)의 지속적인 잔존 시간에 기인한다고 알려져 있다[8]. 광 검출기를 좀 더 빠르게 만들기 위하여 광기전성 검출기(photovoltaic detector)가 시도되고 있다. 최근 보고되는 cutoff (λ_c)가 365 nm인 GaN 층을 기본으로 한 광기전성 검출기인 경우 빠른 응답 시간을 보이고 있다[9, 10]. 쇼트키 장벽을 이용한 GaN 검출기인 경우 광 응답 시간은 약 118 ns였고, 0.18 A/W의 높은 응답도를 나타내며 noise equivalent power(NEP)는 7×10^{-12} W/ $\sqrt{\text{Hz}}$ 를 보인다고 보고되고 있다[9].

지금까지의 AlGaIn 화합물에 관한 연구는 주로 AlGaIn 에피층 성장 조건 확립 및 성장된 에피층의 구조에 관한 연구와 이를 이용한 광소자와 전자소자의 개발치중되어져 왔으며, 상대적으로 AlGaIn 화합물에 대한 광학적 특성 분석은 제한적으로 이루어져 왔다[11]. 본 연구에서는 AlN 몰비에 따른 AlGaIn 화합물의 흡수계수(absorption coefficient)를 투과 스펙트럼과 photothermal deflection spectroscopy(PDS) 방법을 이용하여 결정하였다[12, 13]. PDS 방법은 1980년대에 개발된 광학적 특성 분석 장치로서 민감도가 높아 광학적 흡수 계수가 작은 물질에서도 정확하게 광 특성을 구할 수 있는 신뢰성이 높은 스펙트럼 분석방법이다[14, 15]. 본 연구에서는 PDS 측정에 의해 구해진 흡수 스펙트럼과 수학적 계산으로 구해진 흡수계수를 통하여 상온에서의 AlGaIn 화합물의 유효띠간격(effective bandgap)을 구하였다.

2. 실험

AlGaIn 에피층은 일반적으로 상용되는 분출셀(effusion cell)과 질소 공급원으로서의 플라즈마 원자 라디칼 소스를 이용한 분자선 증착법(plasma induced molecular beam epitaxy)을 이용하여 성장시켰다. 플라즈마 원자 라디칼 소스를 이용한 질소 공급은 이온을 이용한 방법에 비해 질소 라디칼 함유량이 높으며 성장 중 이온에 의해 초래되는 표면 충격을 줄일 수 있는 잇점이 있다. 플라즈마 출력과 성장 중 분자선 증착 챔버의 압력은 각각 400 W와 4×10^{-5} mbar였다. 증착 온도는 840에서 1000°C 까지 변화하였다.

AlGaIn의 유효 흡수 계수는 투과 스펙트럼과 PDS 방법에 의해 측정되었다. 투과 스펙트럼 법은 195에서

2000 nm까지의 스펙트럼 영역에서 1 nm의 해상도를 가지는 Perkin-Elmer Lambda 900 double beam spectrometer를 사용하였다[16, 17]. 투과 스펙트럼으로부터 흡수 계수를 구하기 위하여 Freeman과 Paul에 의해 발표된 방법을 이용하였다[18]. 흡수 계수를 구하기 위해서는 먼저 굴절율(n)을 구해야 한다. 굴절율은 투과 스펙트럼 간섭 무늬(interference fringe)의 최대치와 최소치를 이용하여 구할 수 있으며, 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$n = m \frac{\lambda_m}{2d} \quad (1)$$

여기서 λ_m 은 d 만큼의 두께를 가지는 시료의 투과 스펙트럼의 m 번째 최대치 또는 최소치의 파장을 나타낸다. m 값은 투과 스펙트럼 곡선에서 그래프적인 외삽에 의해 구해질 수 있다. λ_m 에서의 오차는 두께 측정시 발생하는 $\pm 1\%$ 의 오차에 비해 작은 값이므로(1)번 식에 의한 굴절율의 계산은 두께 측정시 발생하는 오차 범위 안에 있다. 기판 위에 한 층의 다른 물질이 성장되어진 경우 흡수 계수(α)는 다음 식에 의해 구해질 수 있다.

$$\alpha = -\frac{1}{d} \ln \left[\frac{1}{B} \{A + (A^2 + 2BT(1 - R_2 R_3))^{1/2}\} \right] \quad (2)$$

$$A = -(1 - R_1)(1 - R_2)(1 + R_3)$$

$$B = 2T(R_1 R_2 + R_1 R_3 - 2R_1 R_2 R_3)$$

여기서 T 는 투과율(transmittance)을 나타내며 R_1 은 공기와 에피층 사이의 반사 계수(reflectance coefficient)를, R_2 는 에피층과 기판 사이의 반사 계수를, 그리고 R_3 은 기판과 공기 사이의 반사 계수를 나타내고 있다. 따라서(2)번 식에 의해 투과 스펙트럼에서 나타나는 간섭 무늬를 통하여 기판 위에 성장된 에피층의 흡수 계수를 구할 수 있다. 다만 위 식은 투과 스펙트럼에서 간섭 무늬가 나타나는 영역에서만 흡수 계수를 구할 수 있다.

3. 결과 및 고찰

AlGaIn 화합물의 흡수계수는 투과 스펙트럼 방법에 의해 스펙트럼의 간섭 무늬에 의해 구해질 수 있다. 그러나 기판에 성장된 에피층의 낮은 흡수도(absorbance)를 구하기 위해서는 광 흡수도에 민감한 측정 방법을 사용한다. 이러한 측정법으로는 PDS 방법이 적절한데 $\alpha d = 10^{-5}$ 처럼 광흡수도가 낮은 영역에서의 III-V 질화물의 흡수도 측정에 사용되어진다. 그림 1은 본 실험에서 사

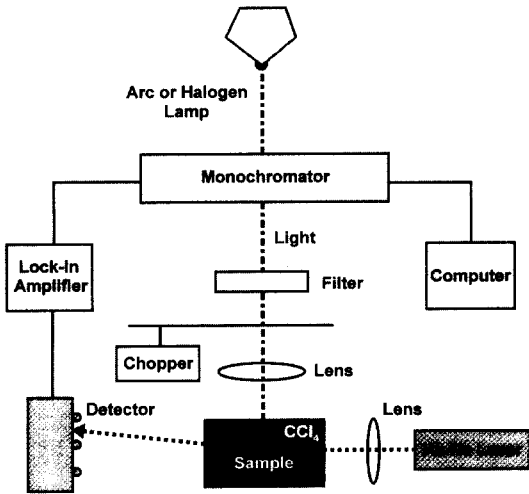


그림 1. Photothermal deflection spectroscopy 측정을 위한 장치구성의 개략도.

용된 PDS 측정을 위한 장치 구성의 개략도를 나타낸 것이다. PDS 방법을 이용하여 광흡수도를 측정하는 과정을 간략히 살펴보면 다음과 같다. 에피층 성장이 완료된 시료는 먼저 유기용제를 사용하여 세척을 한 후, 시료 고정대에 부착한다. 기판 위의 임의의 에피층의 흡수도를 측정하기 위해서는 먼저 단색 광원을 측정하고자 하는 에피층 위에 조사시킨다. 이 실험에서 사용된 단색 광원은 할로겐 램프를 필터링하여 사용하였다. 이 때 조사된 단색광의 일부분이 측정하고자하는 에피층에 흡수되어지면 이로 인해 에피층의 온도가 상승한다. PDS 측정을 위해서 시료는 투명한 액체(CCl₄) 속에 담겨져 있는데, 이 액체는 시료에서 방출된 열에 의해 온도가 올라가며, 상승된 온도에 의해 굴절율이 강하게 변화한다. 이 때 변화되는 굴절율을 감지하기 위하여, 광검출기의 반대방향에서 시료의 수평방향으로 또 다른 단색광원인 He-Ne 레이저를 조사시킨다. 이렇게 측정하고자 하는 에피층 위를 수평방향으로 스치듯 조사시킨 He-Ne 레이저 빔은 그림 1에서와 보여 주는 것과 같이 굴절하게 된다. 굴절된 He-Ne 레이저 빔은 반대편에 위치하는 광검출기에 의해 감지되는데 이로서 위치에 따라 굴절된 레이저 빔의 세기를 알 수 있으므로 이를 스펙트럼으로 나타내게 된다. 단색광의 파장을 변화시키기에 의해 광자 에너지의 변화에 따른 흡수도의 변화를 관찰할 수 있다. PDS 신호는 다음의 관계식으로 나타낼 수 있다.

$$S_{PDS} \propto P_{\lambda}(1-R)[1 - \exp(-\alpha_{PDS} d)] \quad (3)$$

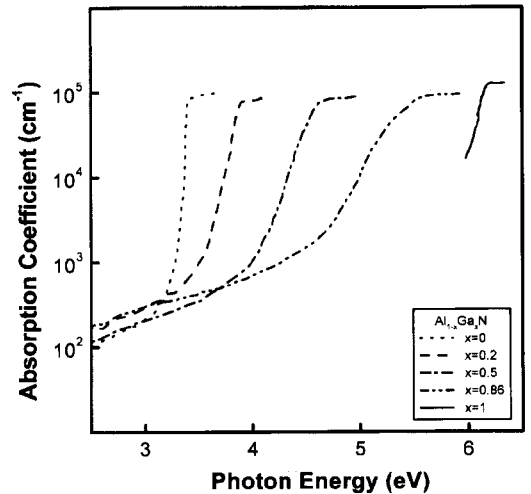


그림 2. 투과 스펙트럼과 PDS 법에 의해 구해진 AlGaN 에피층의 흡수 계수. 점선, 쇄선, 일점 쇄선, 이점 쇄선, 그리고 실선은 각각 AlN 몰비가 0, 0.2, 0.5, 0.86, 그리고 1인 Al_xGa_{1-x}N의 흡수 계수를 나타냄.

여기서 P_{λ} 는 λ 의 파장을 갖는 입사파의 광자 에너지이고 R 은 시료 표면의 반사율이다. 흡수 계수는 (3)번 식의 계산으로 구해질 수 있다.

그림 2는 AlN 몰비에 따른 AlGaN 화합물의 흡수 계수를 나타낸다. AlN 몰비는 0에서 0.2, 0.5, 0.86 및 1까지 변화하였다. 점선은 AlN 몰비가 0인 경우로 GaN의 흡수 계수를 나타내며 쇄선은 AlN 몰비가 0.2, 일점 쇄선은 0.5, 이점 쇄선은 0.8, 그리고 실선인 경우 AlN 몰비가 1인 AlN를 나타내고 있다. 그림 2에 나타난 바와 같이 광자 에너지가 3.4 eV 이하인 경우 AlN 몰비에 관계없이 모든 시료가 거의 비슷한 흡수 계수를 가지며 포화된다. 그러나 광자 에너지가 3.4 eV 이상인 경우는 AlN 몰비에 따라 광자 에너지에 따른 흡수 계수가 다르게 나타나고 있다. 광자 에너지의 증가에 따른 흡수 계수가 급격히 증가하다가 $\alpha = 10^5 \text{ cm}^{-1}$ 가까이에서 포화되는 현상이 AlN 몰비가 다른 시료들에서 동일하게 보여지고 있다. 또한 AlN 몰비가 증가할수록 $\alpha = 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 과 $\alpha = 10^5 \text{ cm}^{-1}$ 사이의 흡수 계수에서 광자 에너지가 증가함을 알 수 있다. 이러한 흡수 계수를 통하여 AlGaN의 유효 띠틈가 구해질 수 있다.

그림 3에 삽입된 그림은 AlN 몰비에 따른 AlGaN의 흡수 계수를 나타내며 그림 상단에 가로로 그려진 실선은 $\alpha = 6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 에 위치하고 있다. 실선과 흡수 계수가 만나는 지점에 대응되는 광자 에너지가 유효 띠틈

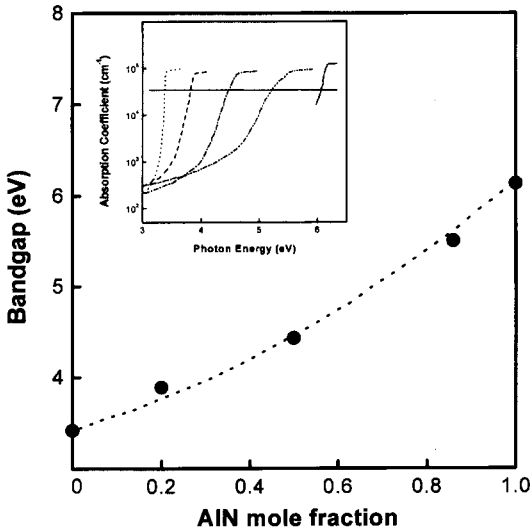


그림 3. AlN 몰비에 대한 유효 띠틈간의 의존성. 삽입된 그림은 AlGaIn 에피층의 AlN 몰비에 따른 흡수 계수.

격(effective bandgap)으로 결정된다. 여기서 실선 $\alpha = 6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 값의 결정은 GaN의 유효 띠틈간격이 3.42 eV 가 되는 지점으로 결정하였다[19, 20]. 그림 3에서 볼 수 있듯이 AlN 몰비가 0, 0.2, 0.5, 0.86 및 1로 증가할수록 구해진 AlGaIn 화합물의 유효 띠틈간격도 3.42, 3.89, 4.40, 5.50 및 6.13 eV로서 더 높은 에너지대로 이동함을 알 수 있다. 이와 같이 $\alpha = 6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 을 이용하여 얻은 AlN의 유효 띠틈간격이 6.13 eV 인데 실험적으로 알려진 값이 상온에서 대략 6.13 eV임이 보고되고 있으므로 사용한 α 값이 본 실험에서 사용한 시료들의 경우에는 잘 맞는다는 것을 간접적으로 입증할 수 있다[11]. 또한 AlN 몰비에 따른 각각의 AlGaIn의 유효 띠틈간격을 연결한 곡선은 아래로 볼록한 곡선으로 특정한 휘어짐 계수(bowing parameter)를 가지게 된다. 본 실험에서 결정된 휘어짐 계수는 1.3 eV이며, 이렇게 결정된 휘어짐 계수는 AlGaIn 화합물의 유효 띠틈간격과 잘 부합되고 있다. 다른 물질에 비해 휘어짐 계수가 큰 값을 가지게 된 것은 GaN와 AlN 사이의 큰 격자 상수 차이와 두 물질 접합시 나타나는 전도대 offset의 큰 차이에 기인한다고 여겨진다.

4. 결 론

플라즈마 원자 라디칼 소스를 이용한 분자선 증착법에 의해 성장된 AlGaIn 화합물의 흡수 계수를 측정하기

위하여 상온에서 광학적 투과 스펙트럼과 PDS 측정을 수행하였다. 높은 민감도를 가지는 PDS 측정에 의해 AlGaIn 화합물의 흡수 계수를 정확하게 측정할 수 있었다. 광자 에너지에 따른 AlGaIn의 흡수 계수가 AlN의 몰비에 따라 측정되어졌으며 구해진 흡수 계수를 이용하여 AlN 몰비에 따른 유효 띠틈간격을 구할 수 있었다. AlGaIn 화합물의 유효 띠틈간격은 흡수계수가 $\alpha = 6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 인 지점에 대응되는 광자 에너지로부터 결정하였다. AlGaIn 화합물의 유효 띠틈간격은 3.42에서 6.13 eV까지 변화하였으며 휘어짐 계수는 1.3 eV로 결정되어졌다.

감사의 글

본 연구는 한국과학기술연구원(Contract No. 2V00332와 2E15940), 산업자원부 (Contract No. 2M08380와 2M08790)의 지원에 의해 수행되어졌으며, 본 연구를 위하여 독일 뮌헨 공대에 방문 연구를 지원해 준 한국과학기술단에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] H. Morkoç, S. Strite, G. B. Gao, M. E. Lin, B. Sverdlov, and M. Burns, *J. Appl. Phys.* **76**, 1363 (1994).
- [2] J. I. Pankove, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **162**, 515 (1990).
- [3] S. Strite and H. Morkoç, *J. Vac. Sci. Technol.* **B 10**, 1237 (1992).
- [4] K. Domen, A. Kuramata, and T. Tanahashi, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1359 (1998).
- [5] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L74 (1996).
- [6] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2105 (1996).
- [7] X. H. Yang, T. Schmidt, W. Shan, J. J. Song, and B. Goldenberg, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1 (1995).
- [8] G. Beadie, W. S. Rabinovich, A. E. Wikenden, D. D. Koleske, S. C. Binari, and J. A. Freitas, Jr., *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1092 (1997).
- [9] Q. Chen, J. W. Yang, A. Osinsky, S. Gangopadhyay, B. Lim, M. Z. Anwar, M. A. Khan, D. Kuksenkov, and H. Temkin, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2277 (1997).
- [10] A. Osinsky, S. Gangopadhyay, R. Gaska, B. Wil-

- liams, M. A. Khan, D. Kuksenkov, and H. Temkin, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2334 (1997).
- [11] H. Angerer, D. Brunner, F. Freudenberg, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Höpler, T. Metzger, E. Born, G. Dollinger, A. Bergmaier, S. Karsch, and H. J. Körner, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1359 (1998).
- [12] J. W. Kim, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, *J. Kor. Phys. Soc.*, to be published in 1999.
- [13] J. W. Kim, C. S. Son, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, Abstracts of the 9th International Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications (Seoul, Korea, 1998) p. 95.
- [14] W. B. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, and D. Fournier, *Appl. Optics* **20**, 1333 (1981).
- [15] A. C. Boccara, D. Fournier, W. B. Jackson, and N. M. Amer, *Optics Letters* **5**, 377 (1980).
- [16] J. W. Kim, C. S. Son, Y. G. Jang, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, O. Ambacher, and M. Stutzmann, *Korean J. Mat. Res.* **9**, 42 (1999).
- [17] J. W. Kim, C. S. Son, I. H. Choi, Y. K. Park, Y. T. Kim, O. Ambacher, and M. Stutzmann, Abstracts of the 4th International Conference on Electronic Materials (Cheju, Korea, 1998) p. 94.
- [18] E. C. Freeman and W. Paul, *Phys. Rev.* **B 20**, 716 (1979).
- [19] 이 실선에 해당되는 값은 데이터에 따라 적절한 값이 달라질 수도 있다. 예를 들면 Ref. 11에서는 AlGaIn의 유효 띠틈격을 구하기 위하여 실선 $\alpha = 7.4 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 를 이용하였다.
- [20] W. Shan, B. D. Little, A. J. Fischer, J. J. Song, B. Goldenberg, W. G. Perry, M. D. Bremser, and R. F. Davis, *Phys. Rev.* **B 54**, 16369 (1990).