

## MOCVD법으로 성장시킨 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 박막의 특성분석

김성익 · 김석봉 · 박수영 · 이석현\* · 이정희\* · 허종수

경북대학교 금속공학과

\*경북대학교 전자공학부

### Characterization of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Thin Film Grown by MOCVD

S.I. Kim, S.B. Kim, S.Y. Park, S.H. Lee\*, J.H. Lee\* and J. S. Huh

Department of Metallurgical Engineering,

\*School of Electronic and Electrical Engineering Kyungpook National University Taegu, Korea

(2000년 6월 2일 받음, 2000년 8월 25일 최종수정본 반음)

초록 자외선 검출소자로 응용될 수 있는 우수한 특성을 지닌  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막을 MOCVD 법으로 성장시킨 후 박막의 구조적인 특성을 조사하였다. 사파이어 기판 위에 성장된  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 물리적인 특성을 평가하기 위해서 Synchrotron Radiation XRD를 사용하였다.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 두께가 커질수록 박막의 결정성은 증가하였으며 아래층인 Undoped GaN의 결정성과 성장된  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 결정성이 서로 비례적인 상관관계를 가지고 있음을 알아내었다. Al 조성비는 박질에 크게 영향을 주었으며 조성비가 높아질수록 표면 형상은 매우 나빠졌다.

**Abstract**  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  thin layers are promising materials for optical devices in the UV regions.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  thin layers were grown on sapphire substrates by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD). The molar Al fraction and crystallinity of layers were deduced from synchrotron x-ray scattering experiment. Surface morphology were investigated using SEM and SPM.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layers crystallinity were related with undoped GaN crystallinity. The Al mole fraction of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layers affect the surface morphology of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layers. The surface morphology was roughened and the cracks were observed by increasing the Al mole fractions.

**Key words :** CVD, XRD, optical materials, thin films

### 1. 서 론

정보화와 멀티미디어로 대변되는 21세기에는 다양한 전자·정보 시스템이 활용될 것으로 기대된다.<sup>1~3)</sup> 이를 위해서 고속의 정보처리, 높은 기록밀도, 고효율의 표시장치 기술, 자외선 센서 등의 발광소자 및 수광소자에 대한 연구는 필수적이다. 질화갈륨 화합물을 이용한 자외선 광장영역의 광전소자는 향후 통신산업에 있어 큰 비중을 차지할 인공위성간의 통신에 있어서 중요한 수광소자로 널리 사용될 수 있다. 지상에서 대기권을 이동하는 물체의 감시 및 천체관측, 제트엔진의 정상동작 여부 등의 감지를 필요로 하는 우주항공분야와 잠수함 통신, 미사일 발사탐지 등의 군사분야, 화재감시 및 핵발전소, 오존층 측정 등의 환경 산업분야에 널리 쓰일 수 있다.<sup>4,5)</sup>

질화갈륨은 3.4eV의 에너지 밴드갭을 가지므로 가시광선 광장의 빛을 완벽히 차단할 수 있으며 열적·화학적 안정성이 뛰어나다.<sup>6~9)</sup>  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 삼원계 화합물은 조성비를 조절함으로서 검출파장이나 실온에서 전기저항을  $10^{-4}$ 에서  $10^8 \Omega \cdot \text{cm}$ 까지 적절하게 선택적으로 결정할 수 있다.<sup>10)</sup> 이로 인해  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  화합물은 자외선 센서 응용에 적합한 물질로 각광받고 있다.<sup>11)</sup> 그러나 사파이어 기판과

$\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 와는 해결해야 되는 문제점이 있다. 그것은 자외선 검출소자에 사용할 수 있을 만큼 우수한 품위의  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막을 성장시키기가 어렵다는 것이다. 이것은 사파이어 기판과  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 격자 부정합이 매우 크고 열팽창 계수의 차이 또한 크기 때문에 발생한다.<sup>12~15)</sup> 광학적, 전기적 특성은  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 조성에 따라서 크게 의존적으로 변화된다. 또한 조성의 변화가 심하게 되면 이로 인해 균일한 특성을 얻기 힘들다. 그러므로 균일하면서 우수한 결정성을 갖는 박막을 성장시키는 것이 우선적으로 해결해야 할 과제이다.

본 연구에서는  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막을 MOCVD 장비를 이용하여 성장시키고 난 뒤, 성장된 박막의 물리적 특성을 조사하여 조성의 변화에 따른 구조적인 변화를 조사하였다. Al 조성비를 적절하게 변화시킴에 따라 구조적 특성이 변화되는 것을 관찰하였으며 이러한 결과를 바탕으로 박막성장에 가장 지배적으로 작용하는 인자에 대해서 살펴보았다. 그리고 이러한 물리적 특성을 살펴보기 위해서는 또한 Synchrotron X-ray 회절시험<sup>16)</sup>, PL (Photoluminescence), SEM (Scanning Electron Microscopy), Auger 분석 등을 사용해서 면밀하게 관찰하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에 사용된 MOCVD 장치는 반응기 내부의 압력을 일정하게 유지시켜 주면서 균일한 반응가스의 흐름을 얻기 위해 수직형 반응기를 사용하는 cold wall 시스템으로 하부 기판을 약 1000rpm까지 고속으로 회전시켜 기판에서 균일한 반응이 일어나도록 설계되었으며 불순물의 혼입을 감소시키기 위하여 loadlock 시스템을 사용하였다. 또한 기판의 가열은 전기저항 가열을 사용하며 기판홀더의 중심부 근과 외측의 두 개의 히터를 사용 기판전체에 일정한 온도 유지를 가능하게 하였고 온도 측정은 기판홀더 뒤편의 열전 대를 사용하여 측정하는 방법과 반응기 위에 파이로메터를 설치하여 실제 반응이 일어나는 기판 표면의 온도를 측정하는 두 가지 방법을 사용하였다.

기판으로는 2inch (0001) 사파이어를 사용하였으며 사파이어 기판의 표면 상태가 결정 성장에 큰 영향을 미치므로 메탄올, 아세톤, TCE 용액에 넣어 1분간 흔들어 세척한 다음 초음파 세척기를 사용하여 5분씩 용액을 교체하여 2회 실시하였으며 탈이온수로 10분간 세척한 다음 무기물의 제거를 위하여 황산과 인산의 혼합 용액에 5분간 무기물을 제거한 다음 탈이온수로 세척하였다. 세척이 완료된 기판은 탈이온수에 보관되었으며 성장 직전에 꺼내어 수분을 고준도질소를 사용하여 제거 한 뒤 반응로에 넣었다. 최종적으로 챔버 내부에서 수소 가스만을 훌린 후 1030°C로 가열하여 thermal cleaning을 실시하여 막을 성장하기 전의 기판에 있는 불순물을 최소화하였다.

또한, 사파이어와 질화물반도체 사이의 격자상수의 차이와 열팽창계수의 차이에 따른 막 성질의 저하를 감소시키기 위하여 GaN 완충층을 성장시켰다. GaN 완충층을 500°C에서 300 Å 성장한 뒤 도평되지 않은 GaN 막을 1020°C에서 7000 Å 성장 시켜서 기판과 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 막 사이에 작용하는 격자상수차이나 열팽창계수의 차이에서 기인하는 전위의 생성이나 crack의 발생을 최소화하였다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 광학적인 발광특성을 보기 위하여 PL 분석을 실시하였으며 325nm의 파장을 갖는 He-Cd 레이저를 사용하여 상온에서 실시하였다. PL 시스템의 monochrometer는 Raman호환 U1000으로써 분해능은 0.1 Å이며 검출기로는 GaAs photon multiplier tube를 사용하였다.

박막표면의 상태를 확인하기 위해 SEM (Scanning Electron Microscopy) 사진을 촬영하였으며 촬영에 사용된 장비는 Zeol 5400이다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 막에서 불순물의 혼입이나 각 layer 간의 경계가 확실하게 이루어져 있는지 확인하기 위하여 Perkin-Elmer PHI 650을 사용하여 Auger depth profile를 실시하였다.

에피증의 구조적 특성을 조사하기 위해서는 기존의 일반적인 XRD (X-Ray Diffractometer) 보다는 고해상도를 갖는 Synchrotron X-ray diffraction system을 사용하였다. 일반적인 XRD 방법은 입사되는 빔의 파장이 일정하지 않고 입사각과 반사각을 조정하는 goniometer의 정밀도가 부족하기 때문에 특성 평가에 부적절한 측면이 있다. 이에

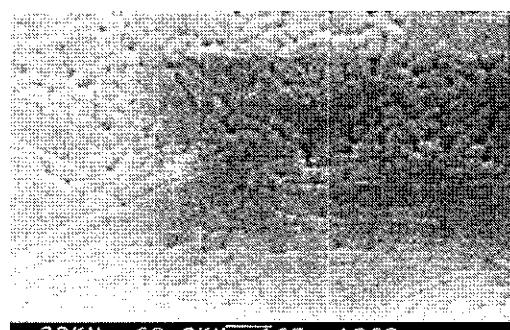
반해서 고해상 X-ray를 사용하는 Synchrotron X-ray diffraction 방법은 기존의 일반적인 XRD에 비해, 시편에 입사되는 X-ray의 파장이 균일하고 수 arcsec 단위로 스캔이 가능하며 역격자면 상의 한 지점을 선택하여 그 부근을 정밀하게 조사할 수 있는 장점을 지니고 있다. 이 방법으로 모재격자에 다른 고용체가 형성됨으로 인해 발생하는 미세한 격자상수의 차이를 측정할 수 있기 때문에 질화물 반도체의 단결정 박막의 특성평가에 적합하다.

## 3. 결과 및 고찰

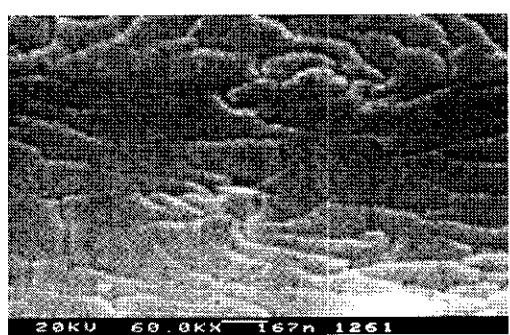
성장된 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 여러 가지 물리적 특성 중에서 조성에 따른 박막 표면 상태는 SEM을 통해서 살펴본 뒤에 다시 세부적인 모습은 SPM으로 관찰하였다. 그림 1



a)



b)



c)

Fig. 1. SEM image of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N surface grown at 1020°C : a) x = 0.06, b) x = 0.15, c) x = 0.5.

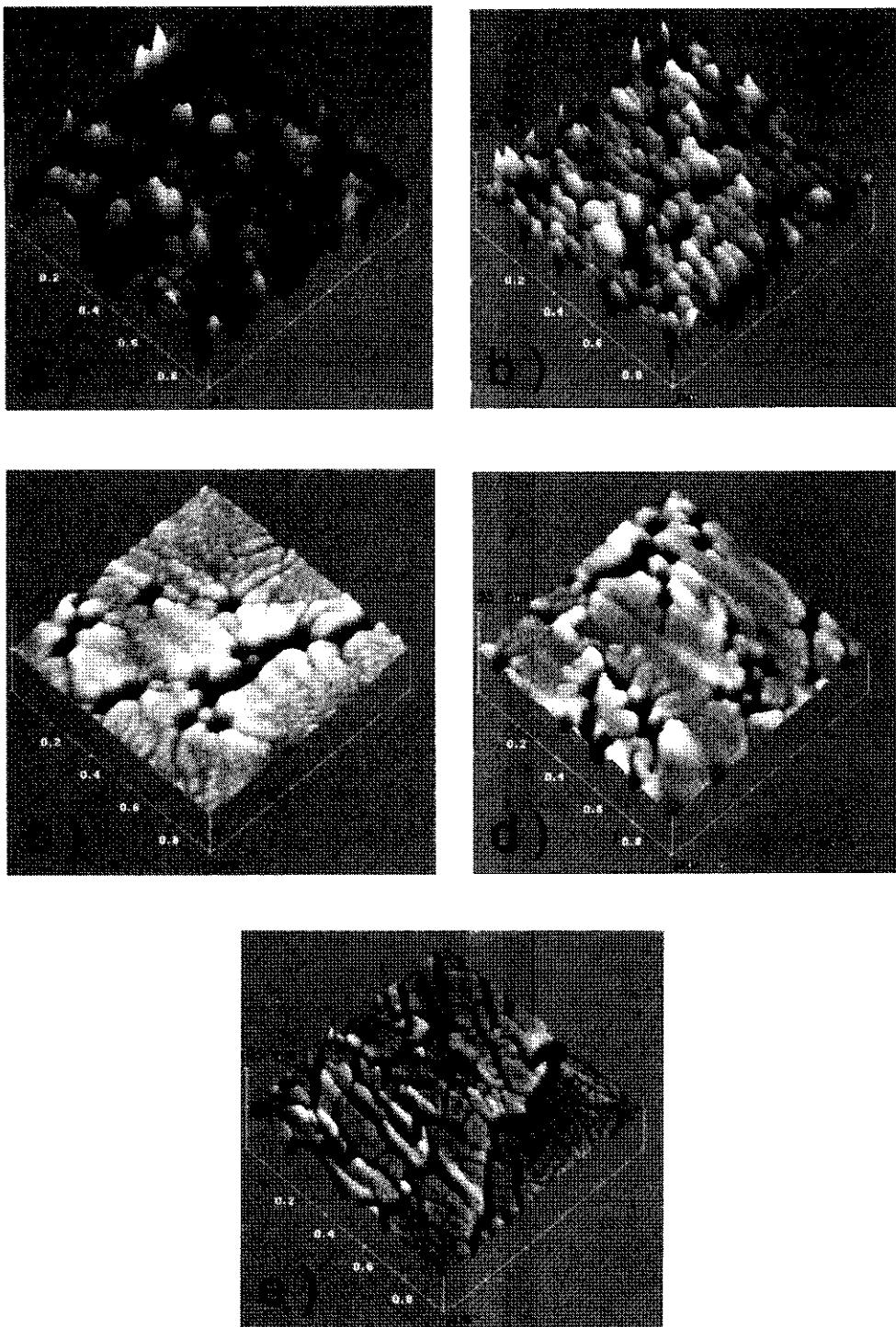


Fig. 2 SPM images of surface morphology of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  as a function of Al mole fraction :  
a)  $\text{Al}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{N}$ , b)  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ , c)  $\text{Al}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{N}$ , d)  $\text{Al}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{N}$ , e)  $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ .

은 성장된  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막 표면의 SEM 사진이며 Al의 조성비가 5.8%, 15%, 50%로 증가함에 따라 표면의 굴곡이 증가하는 현상을 나타내고 있다. 그림 2는 SEM 관찰을 통해서 얻어진 결과를 바탕으로 실시한 SPM 분석을 나타내었다. 우선 SEM 관찰부터 살펴본다면 그림 1 a)에서는 얇은 피트가 형성되기 시작하였으며 그물처럼 서로 연결되지는 않았지만 여러 균데에서 서서히 피트가 모여 있다. 주 위보다 깊은 굴곡이나 피트 등은 그림 2 a)의 SPM을 통해

서 보다 자세히 살펴볼 수 있었으며 곳곳에 깊게 패인 형태를 나타내고 있었으며 표면이 매우 불규칙하면서 거친 모습이다. 그리고 피트들이 조금은 뭉쳐진 부분도 있기 때문에 더욱 불규칙적인 형태를 나타내고 있다. 또한 표면의 작은 덩어리 모양의 입자들은 불균일한 크기를 지니면서 주상정 형태로 성장된 애피충의 모습을 나타내고 있다. Al 조성비가 더 증가한 그림 1 b)에서는 그림 1 a)와 다르게 피트들이 모여서 더 많은 굴곡을 형성하고 있다. 그리고 그 굴곡

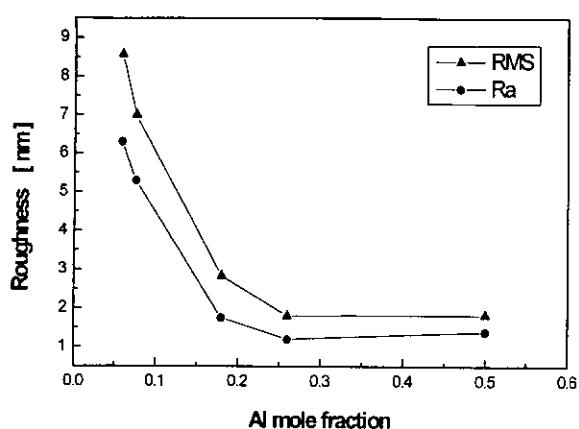


Fig. 3. RMS and average roughness estimated by SPM images as a function of Al mole fraction.

들은 그물처럼 연결된 모습과 함께 매우 조밀하면서도 불규칙적으로 이루어져 있다. 이러한 모습을 SPM으로 좀 더 자세히 살펴본 결과는 그림 2 c)에 나타나 있다. 표면의 깊은 퍼트들이 합쳐져서 길게 패인 굴곡으로 연결되고 있다. 그리고 성장된 에피층의 주상정 형태가 더욱 치밀해지면서 평면의 거칠기가 변화되고 있다. 즉 작은 입자 형태들이 서로 뭉쳐져서 평평한 곳은 더욱 평활한 표면 상태로 변화되고 있다. 그림 1 c)는 Al 조성이 50.0% 일 때의 형상이다. 그림 1 b)에 비해서 굴곡이 더욱 굽어지며 커다란 굴곡 사이에는 여전히 조밀한 작은 굴곡이 함께 형성되어져 있다. 조밀한 굴곡에 대해서는 그림 2 e)의 SPM 관찰로부터 알 수 있듯이 성장된 박막의 전체 표면에 걸쳐서 균열이 발생하고 있다. 커다란 균열 사이로 다시 작은 균열이 생성되어져 있다. 이러한 작은 균열들이 서로 모여서 더욱 복잡하고 미세한 표면 구조를 나타내고 있다.

SEM과 SPM 관찰을 통해서 살펴본  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 표면상태는 조성비에 따라서 급격하게 변화하고 있다. 따라서 구체적인 박막의 변화를 알아보기 위해 표면 거칠기를 측정해 보았다. 그림 3은 Al 조성비에 따른 거칠기의 변화를 나타낸 것이다. RMS (root mean square)와 Ra (average roughness)의 두 값은 점차 Al의 조성비가 높아질수록 표면의 거칠기 값은 낮아졌다. SPM 측정결과로부터 그림 2 c), d), e)의 거칠기가 그림 2 a), b)의 거칠기에 비해서 매우 낮아졌다. SEM이나 SPM 상에서 나타나는 그림 2 c), d)의 깊은 굴곡 형태의 결합들이 그림 2 e)의 균열 형태로 변화되었음에도 불구하고 표면 거칠기의 변화 값은 크지 않다. SEM, SPM으로 살펴본  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  막의 구조적인 특성은 Al 조성이 높아짐에 따라 표면의 형상과 굴곡은 심하게 변화되고 있다. 그러나 Al의 조성비가 높은 박막의 거칠기 변화는 심한 차이를 나타내지 않는다.

구조적인 특성과 함께 박막의 광학적인 특성을 살펴보기 위해서 He-Cd laser PL 분석 장비를 사용하였다. PL 분석을 통해서는 Al의 조성이 증가함에 따라  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  주파크가 짧은 파장의 더 큰 에너지 쪽으로 이동하였다. 그림 4와 5를 서로 비교해 보면 조성이 증가함에 따라서  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$

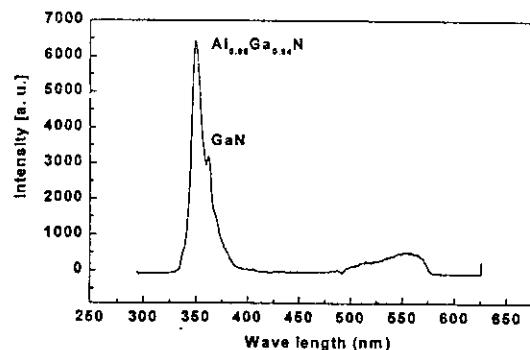


Fig. 4. Photoluminescence spectrum of  $\text{Al}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{N}$  layer at R. T.

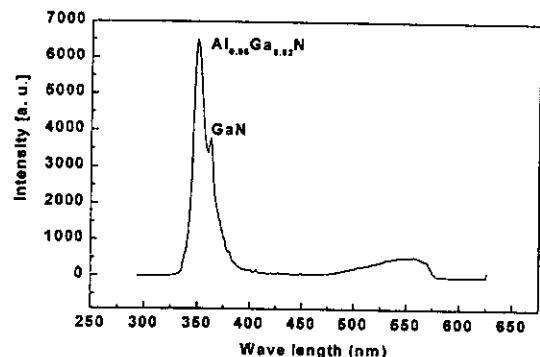
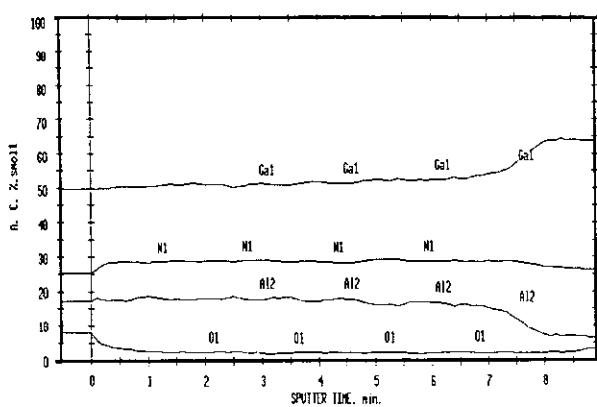


Fig. 5. Photoluminescence spectrum of  $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}$  layer at R. T.

주파크 파장의 이동을 관찰할 수 있었으며 이를 이용하여 간단한 계산을 통해 Al 조성비를 결정할 수 있다. 그림 4에서 좌측에 나타나 있는 356.0nm 파장의 피크는 Al이 5.8% 포함되어 있는  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막에 해당하는 것이며 우측에 작게 나타난 364.0nm 파장의 피크가 GaN의 에너지 밴드갭에 해당하는 피크이다. 그림 5에서는 좌측에 352.6nm의 위치에 Al의 조성이 8%인  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 피크가 있으며 우측에 좀 더 낮은 세기로 GaN 박막의 피크가 보이고 있다. 그리고 그림 4와 5에서 550nm 부근에서 넓게 다른 피크가 나타나고 있는데 이것은 undoped GaN에서 나타나는 deep level 피크로 생각되며 undoped GaN 박막 성장시에 도입된 전위, 격자상수, 열팽창계수, 불순물의 영향 등으로 발생하는 결함이나 변형에 의해서 형성되는 것이다. 그러므로 불순물의 영향에 의해 생성될 수 있는 여러 가지 악영향을 고려하여 먼저 불순물의 유입에 대한 정보를 얻기 위해서 다른 측정 방법을 사용하였다.

$\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  막질에 큰 영향을 줄 수 있는 불순물의 유무를 알아보기 위해서 AES (Auger Electron Spectroscopy)를 사용하였다. 그림 6은 Auger depth profile을 나타낸 것이다. 박막 성장 시에 불순물에 의한 전위의 도입이나  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 품질에 영향을 줄 수 있는 원소인 산소에 대한 유무를 살펴보았다.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막과 그 아래의 undoped GaN 층 전반에 걸쳐서 산소의 양이 매우 적게 나타나고 있다.  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막 층의 Al 조성은 조금의 차이는 있지만 깊이 방향으로는 균일하게 박막 내에 존재하고

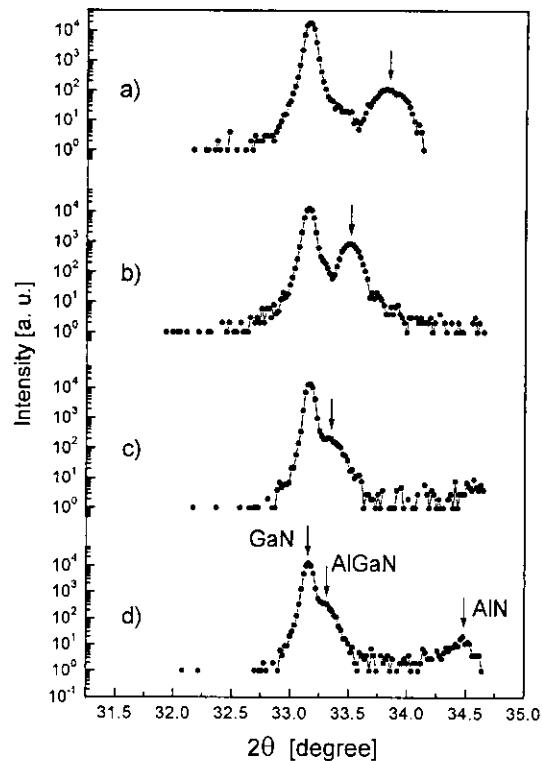
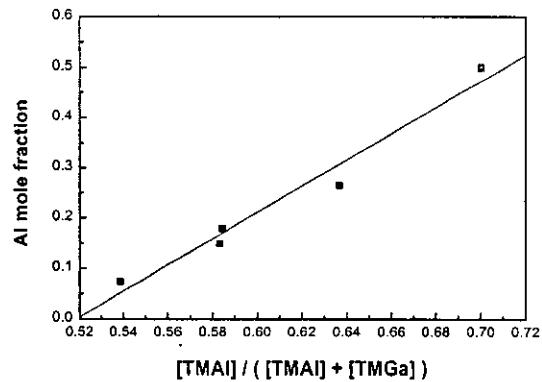
Fig. 6. Auger depth profile of  $\text{Al}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{N}$  layer.

있다는 것을 알 수 있었다. 이것은 실제 박막이 성장될 때 깊이 방향으로는 거의 박막 조성이 균일성을 나타내고 있음을 나타낸다. 그리고  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막 전반에 걸쳐 불순물 유입이 적음을 알 수 있다.

325nm 파장의 He-Cd laser PL 분석기를 사용해서 15 % 이상의 Al을 함유하는  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 조성비를 결정할 수는 없기 때문에 Synchrotron radiation XRD 분석을 통한 Vegard's law를 사용해서 Al의 조성비를 구했다. Synchrotron radiation XRD 분석은 실제적인 격자상수값을 측정하여 Al의 조성비를 결정함으로써 PL 분석 보다는 정확한 데이터를 얻을 수 있다. 그러나 이러한 Vegard's law는  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 삼원계 화합물에서 Al의 조성에 따라서 직선적으로 격자상수가 변화한다는 가정 하에서부터 분석이 가능하다. 그래서 PL분석에서 Al 조성비를 구한 것과 Synchrotron radiation XRD 분석에서 Al 조성비를 구한 것을 서로 비교해볼 필요가 있다. 그러나 실제로 두 가지 측정법으로 서로 비교해 본  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막은 10 % 이하의 낮은 조성비였지만 두 가지 방법으로 결정한 조성비는 크게 다르지 않았다.

그림 7은 각 Al 조성비에 따른  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 Synchrotron radiation XRD 회절 피크를 나타내었다. Al 조성비가 높아질수록  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 주피크가 뚜렷하게 이동됨을 확인할 수 있었다. 이는 GaN 격자가 Al의 조성이 증가함에 따라 발생되는 격자변형의 영향을 나타내며 또한 PL에서 측정하기 어려운 Al의 조성이 높은  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 조성을 결정할 수 있는 방법으로 사용된다. 그림 7의 a)는 Al의 조성이 50.0 %인  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막의 X-ray 회절 피크를 나타내었다. GaN의 분명한 피크와 더불어  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 피크가 뚜렷하게 구분되었다. 일반적인 X-ray 회절 분석으로서는 성장시킨 박막의 두께가 얇고 Al의 조성이 낮을 경우에 제대로 피크가 구분되지 못하지만 분해능이 우수한 Synchrotron X-ray를 사용하면 뚜렷하게 주피크를 분리시킬 수 있었다.

그림 7의 c)와 d)에서는 Al의 조성이 낮아서 GaN 피크와 서로 중첩되어, 정확한  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 피크가 그래프 상으로 뚜렷하게 구별되기는 어렵지만 실험으로는 충분히

Fig. 7. Synchrotron X-ray diffraction profiles of  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layers a)  $\text{Al}_{0.5}\text{GaN}$ , b)  $\text{Al}_{0.18}\text{GaN}$ , c)  $\text{Al}_{0.09}\text{GaN}$ , d)  $\text{Al}_{0.06}\text{GaN}$ .Fig. 8. The relation between solid composition of  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layer and the gas phase composition.

$\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 피크를 구별하여 확인 할 수 있었다. 그림 7의 d)에서는 AlN의 피크가 나타났지만  $\text{Al}_{x}\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막을 성장시킬 때 발생한 국부적인 AlN의 석출에 의해서 발생한 것인지에 대해서는 검토 중이다.

그림 8은  $\text{TMAI}/(\text{TMAI} + \text{TMGa})$ 의 비에 따른 Al 조성비의 변화를 나타낸 것이다. 그림 8에서 알 수 있듯이 Al의 원료인 TMAI의 양의 증가함에 따라 Al의 조성비가 증가하고 있다.  $\text{TMAI}/(\text{TMAI} + \text{TMGa})$ 의 비에 따른 조성의 변화는  $\text{TMAI}/(\text{TMAI} + \text{TMGa})$ 의 비가 0.54 일 때 7.5 %의 Al 조성비를 얻었다. 그리고  $\text{TMAI}/(\text{TMAI} + \text{TMGa})$ 의 비가 0.7로 커지면 Al의 양이 50 %로 변화되고 있다. 그림 8은 경험적인 방법으로 Al의 조성비를 제어하

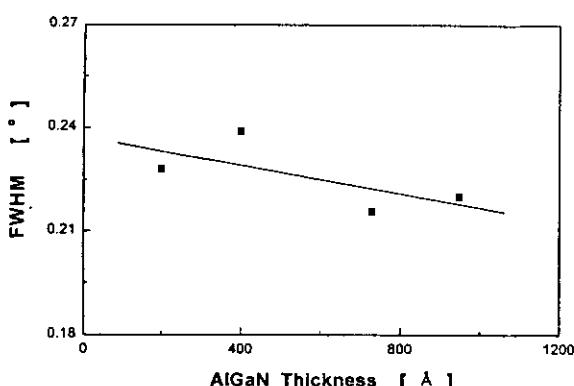


Fig. 9. The relation between Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N layer thickness and the FWHM value for Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N layer grown by MOCVD.

기 위해서는 공급하는 TMAI의 양을 조절해서 원하는 Al 조성비의 박막을 성장시킬 수 있음을 나타낸다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 성장에 대한 메카니즘 규명을 위해서는 부수적인 반응에 대한 고찰이 매우 중요하다. 그럼 8을 통해서 볼 때 Al의 조성비는 상대적으로 TMAI/(TMAI+TMGa)의 비보다 낮다. 이것은 실체적으로 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 성장에 소모되는 Al의 양과 더불어 부수적인 기상반응으로 소모되는 양이 존재함을 나타낸다. 이에 대해서는 Makino 등이 제안한 바 있다.<sup>17)</sup> Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 성장에 대한 메카니즘은 열학적인 방법과 속도론적인 방법 등의 간접적인 방법들이 많이 제안되고 있다.<sup>18,19)</sup>

앞에서 살펴본 그림 7에서는 단순히 조성비를 결정하는데 Synchrotron radiation XRD 분석법을 사용하였지만 조성비를 구하는 것 외에도 Synchrotron X-ray를 사용해서 Reflectivity법으로 박막 두께를 측정하였다. 이는 박막의 결정성에 영향을 주는 인자를 살펴보기 위해서 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 두께를 측정하였다. 두께를 측정하기 위한 방법으로는 SEM 관찰을 통한 박막 두께 측정법도 있지만 정확한 두께를 측정하기가 힘들기 때문에 Reflectivity법을 사용하였다. 성장된 박막의 결정성과 두께에 대한 관계는 그림 9에 나타내었으며 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 두께에 따른 Rocking Curves의 FWHM을 조사하였다. 일반적으로 알려진 것과 같이 에피층의 두께가 두꺼워질수록 결정성을 나타내는 FWHM 값이 작아지면서 결정성이 향상되고 있다. 그러나 Al의 조성비에 따라서는 매우 불규칙적인 결정성을 나타내며, Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 특성 때문에 Al의 조성비와 결정성이 밀접한 상관관계가 있다기보다는 오히려 다른 변수들과 크게 관련이 있다. 따라서 박막 성장 조건에 따라서 박막의 결정성에 크게 영향을 줄 수 있는 인자들 중에서 우선적으로 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 두께에 따른 결정성의 변화에 대한 GaN 박막과의 관계에 대해서 생각해 보고자 하였다.

그림 10은 GaN의 FWHM 변화에 따른 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 FWHM의 변화를 나타낸 것이다. GaN 박막의 FWHM의 변화에 따라서 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 FWHM이 직선적인 관계를 나타내고 있다. 동일한 조건의 p-type Undoped GaN FWHM의 0.04°였다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막이 성장됨에

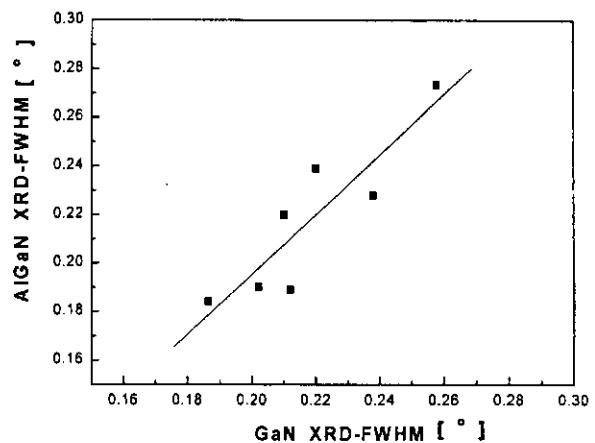


Fig. 10. The relation between the FWHM value for GaN layer and the FWHM value for Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N layer grown by MOCVD.

따라서 두 박막의 결정성이 낮아졌다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 두께가 증가함에 따라서 GaN의 박막의 결정성이 함께 증가하는 관계를 나타내었다. 이러한 원인에 대해서는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 스트레인 영향과 함께 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 성장 시의 고온 때문에 GaN 박막의 결정성이 함께 변화된 것으로 생각된다. 이러한 결과들을 통해서 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 결정성에 우세한 영향을 미치는 인자는 조성비의 변화보다는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 두께나 성장조건의 변화가 더 크게 영향을 미치고 있으며 이 때문에 GaN 박막의 결정성에도 영향을 주고 있다.

#### 4. 결 론

Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막을 MOCVD법을 사용하여 성장하였으며, Al 조성비는 source(TMGA, TMAI)의 비를 변화시키면서 조정하였으며 이에 대한 구조적인 특성을 조사하여 아래와 같은 결과를 얻었다.

- 1) Al과 Ga의 source 공급량을 변화시켜서 여러 가지 Al 조성비를 갖는 박막을 성장시으면 TMAI/(TMGA+TMAI) 값이 0.7인 조건에서 50%의 Al 조성비를 갖는 박막을 성장시켰다. 그리고 입력되는 source의 양에 따라 선형적으로 Al의 조성비도 증가하였다.
- 2) Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막의 결정성은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 두께와 GaN의 결정성에 영향을 받고 있으며 박막의 두께가 증가할수록 결정성이 증가하였다. 두 박막의 결정성을 조사한 결과로부터 서로 비례적인 관계를 유지하고 있음을 알아내었다.
- 3) 조성비는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 표면의 형태에 크게 영향을 주었다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막 표면의 상태는 Al의 조성비가 증가할수록 평탄한 상태를 거쳐서 에피층 표면에 깊은 굴곡이 생기는 형태로 변화하였다. 박막 표면의 거칠기는 조성비가 증가할수록 낮아져서 일정한 수준의 거칠기를 유지하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 1999년도 한국학술진흥재단 선도 연구자 지원

사업(99-E00641)의 연구과제로 수행되었습니다. 본 논문의 내용 중 일부 실험자료는 포항 방사광 가속기에서 수행되었습니다.

### 참 고 문 헌

1. S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh : Jpn. J. Appl. Phys., **30**, 12A (1991) pp.L1998-L2001.
2. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama : Jpn. J. Appl. Phys., **34**, 7A (1995) pp. L797-799.
3. M.A. Haase, J. Qui, M. Depuydt, and H. Cheng : Appl. Phys. Lett., **59**, 11 (1991) pp.1272-1274.
4. Y.S. Park : International Symposium on Blue Laser and Light Emitting Diodes, Chiba, Japan, March (1996) pp.289-294.
5. H. Amano, T. Asahi, and I. Akasaki : Jpn. J. Appl. Phys., **29**, 2 (1990) pp.L205-L206.
6. M. Sato : J. Appl. Phys., **78**, No.3 (1995) pp.2123-2125.
7. S.N. Mohammad and H. Morkoc : J. Appl. Phys., **78**, 6 (1995) pp.4200-4205.
8. S. Murugkar, R. Merlin, A. Botchkarev, A. Salvador, and H. Morkoc : J. Appl. Phys., **77**, 11 (1995) pp.6042-6043.
9. J.H. Edgar : *Properties of group III nitrides*, EMIS data reviews series, INSPEC, United Kingdom, **11**, (1995) 3
10. S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh : J. Appl. Phys., **71**, 11 (1992) pp.5543-5549.
11. I. Akasaki and H. Amano : *International Symposium on Blue Laser and Light Emitting Diodes*, Chiba, Japan (1996) pp.11-16.
12. H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda : Appl. Phys. Lett., **48**, 5 (1986) pp.353-355.
13. I. Akasaki, H. Amano, Y. Koide, K. Hiramatsu, and N. Sawaki : J. Crystal Growth, **98**, (1989) pp.209-219.
14. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama : Appl. Phys. Lett., **67**, 13 (1995) pp. 1868-1870.
15. S. Nakamura : Jpn. J. Appl. Phys., **30**, 10A, (1991) pp.L1705-L1707.
16. W. Press, M. Tolan, J. Stettner, O.H. Seeck, J.P. Schlamka, V. Nitz, L. Schwalowsky, P. Muller-Buschbaum and D. Bahr : Physica B, **221**, (1996) pp.1-9.
17. O. Makino, K. Nakamura, A. Tachibna, H. Tokunaga, N. Akutsu, K. Matsumoto : Appl. Surf. Sci., **159-160**, (2000) pp.374-379.
18. D.C. Lu, S. Duan : J. Crystal Growth, **208**, (2000) pp.73-78.
19. T.G. Mihopoulos, V. Gupta, K.F. Jensen : J. Crystal Growth, **195**, (1998) pp.733-739.