

## GaN 완충층 두께가 GaN 에피층의 특성에 미치는 영향

조용석<sup>a,b</sup> · 고의관<sup>c</sup> · 박용주<sup>b</sup> · 김은규<sup>b</sup> · 황성민<sup>d</sup> · 임시종<sup>d</sup> · 변동진<sup>a</sup>

<sup>a</sup>고려대학교 재료공학과  
<sup>b</sup>한국과학기술연구원 반도체재료연구실  
<sup>c</sup>기초과학지원연구원 서울분소  
<sup>d</sup>LG 전자기술원 소자재료연구소

### Effects of GaN Buffer Layer Thickness on Characteristics of GaN Epilayer

Yong Suk Cho<sup>a,b</sup>, Eui Kwan Koh<sup>c</sup>, Young Ju Park<sup>b</sup>, Eun Kyu Kim<sup>b</sup>,

Sung-Min Hwang<sup>d</sup>, Shi-Jong Leem<sup>d</sup>, and Dongjin Byun<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Department of Materials Science and Engineering, Korea University 1 Anam-Dong 5-Ka, Sungbook-Ku, Seoul, 136-701

<sup>b</sup>Semiconductor Materials Laboratory, Korea Institute of Science and Technology, P.O. Box 131, Cheongryang, Seoul, 130-650

<sup>c</sup>Seoul Branch, Korea Basic Science Institute, Seoul, 136-701

<sup>d</sup>LG Electronics Institute of Technology, 16 Woomyeon-Dong, Seocho-Gu, Seoul, 137-724

(2001년 4월 12일 받음, 2001년 6월 18일 최종수정본 받음)

**초 록** Metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) 법을 사용하여 sapphire (0001) 기판 위에 GaN 완충층을 성장하고, 그 위에 GaN 에피층을 성장하였다. GaN 완충층은 550°C에서 약 26 nm에서 130 nm까지 각각 다른 두께로 성장하였고, GaN 에피층은 1100°C에서 약 4  $\mu\text{m}$ 의 두께로 성장하였다. GaN 완충층 성장 후 atomic force microscopy (AFM)으로 표면 형상을 측정하였다. GaN 완충층의 두께가 두꺼워질수록 GaN 에피층의 표면이 매끈해지는 것을 scanning electron microscopy (SEM)으로 관찰하였다. 이것으로 GaN 에피층의 표면은 완충층의 두께와 표면 거칠기와 관계가 있다는 것을 알 수 있었다. GaN 에피층의 결정학적 특성을 double crystal X-ray diffraction (DCXRD)와 Raman spectroscopy로 측정하였다. 성장된 GaN 에피층의 광학적 특성을 photoluminescence (PL)로 조사한 결과 두께가 두꺼운 완충층 위에 성장된 에피층의 결정성이 더 좋은 반면, 내부 잔류응력은 증가하는 결과를 보였다. 이러한 사실들로부터 완충층의 두께가 두꺼워짐에 따라 내부 자유에너지가 감소하여 에피층 성장시 측면성장을 도와 표면이 매끈해지고, 결정성이 좋아졌다.

**Abstract** GaN buffer layer and epilayer have been grown on sapphire (0001) by metal organic chemical vapor deposition (MOCVD). GaN buffer layer ranging from 26 nm to 130 nm in thickness was grown at 550°C prior to the 4  $\mu\text{m}$  thick GaN epitaxial deposition at 1100°C. After GaN buffer layer growth, buffer layer surface was examined by atomic force microscopy (AFM). As the thickness of GaN buffer layer was increased, surface morphology of GaN epilayer was investigated by scanning electron microscopy (SEM). Double crystal X-ray diffraction (DCXRD) and Raman spectroscopy were employed to study crystallinity of GaN epilayers. Optical properties of GaN epilayers were measured by photoluminescence (PL). The epilayer grown with a thin buffer layer had rough surface, and the epilayer grown with a thick buffer layer had mirror-like surface of epilayer. Although the stress on the latter was larger than on the former, its crystallinity was much better. These results imply that the internal free energy is decreased in case of the thick buffer layer. Decrease in internal free energy promotes the lateral growth of the GaN film, which results in the smoother surface and better crystallinity.

**Key words** : GaN, buffer layer, MOCVD

### 1. 서 론

Wurtzite 구조를 가지는 GaN은 상온에서 3.4 eV의 직접 천이형 밴드갭을 가지며 기관과의 부정합 정도가 발광 특성에 큰 영향을 주지 않아서 청색 및 자외선 영역의 light emitting diode (LED)와 laser diode (LD) 소자에 유용하게 사용되는 재료이다.<sup>1~3)</sup> 특히 같은 Wurtzite 구조를 가지며 밴드갭이 각각 1.9 eV, 6.2 eV인 InN, AlN와 연

속적인 고용체를 형성할 수 있기 때문에 불순물의 활성화 에너지 및 도핑 농도에 따라 파장 조절이 가능하므로 조성에 따른 삼원계 질화물을 제조하여 파장의 선택 범위가 넓은 가시 발광 다이오드의 제작이 가능하다.<sup>4)</sup>

이렇게 좋은 응용성을 가진 GaN은 물질의 특성상 벌크 형태의 단결정 제조가 매우 어려워 현재 상업화 된 것은 metal organic chemical vapor deposition (MOCVD)을 이용하여 이종기판 위에 에피층을 성장한 박막 물질을 사용

한다. 따라서 GaN 박막은 호모 에피택셜 성장보다 헤테로 에피택셜 성장이 더 일반적이며 이에 따른 기판의 선택이 근본적인 문제로 대두된다. 특히 GaN 박막 성장에 사용되는 이종 기판으로는 sapphire ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ )의 사용이 대표적이나 GaN과의 격자 부정합의 차이가 a축 (10 $\bar{1}$ 0)의 경우 16%나 되므로 박막 성장 초기부터 발생하는 부정합 전위, threading 전위, 적층결함 및 IDB (inversion domain boundary) 등의 결함이 관찰된다.<sup>5~7)</sup> 이러한 결함의 정도가 소자의 수명과 발광 효율을 높이는데 매우 중요한 요소이므로, 결함을 개선하는 노력이 여러 방법을 통해 시도되고 있다. 이와 관련되어 종래에 시도된 방법으로는 완충층을 사용하는 것이다. 통상적으로 Akasaki에 의한 AlN이나 Nakamura에 의해 성공을 거둔 GaN 완충층이 주로 사용되고 있다.<sup>8,9)</sup> 이러한 비정질 또는 다결정질의 완충층은 기판과 동일한 결정성을 갖는 많은 핵생성 장소를 제공하여 GaN 성장을 용이하게 해주며, 박막과 기판 사이의 계면 에너지를 감소시켜 측면성장을 촉진시켜주는 역할을 한다.<sup>9)</sup>

본 연구에서는 GaN 완충층의 두께에 따른 표면의 형상이 GaN 에피층의 표면 형상에 미치는 영향과 그리고 기판과의 부정합에 의해 발생하는 잔류응력 및 결정도를 조사하여 완충층의 두께에 따른 효과 등을 체계적으로 분석하였다.

## 2. 실험 방법

약 4  $\mu\text{m}$  두께의 도핑이 안된 GaN 에피층을 sapphire (0001) 기판 위에 수평형 MOCVD법에 의해 성장하였다. 기판은 성장 전에 유기물 세척을 한 다음  $\text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_3\text{PO}_4 = 3 : 1$  용액과, HF 10% 용액에서 각각 10분간 에칭을 하였다. 수소 분위기하에 1100 $^\circ\text{C}$ 에서 10분간 열세척을 한 후 550 $^\circ\text{C}$ 까지 온도를 내려 약 26 nm에서 130 nm 두께의 GaN 완충층을 성장하고, 다시 온도를 1100 $^\circ\text{C}$ 까지 올려 GaN 에피층을 성장하였다. GaN 에피층 성장시  $\text{NH}_3$ 와 TMGa의 유량은 1.5 slm, 97  $\mu\text{mol}/\text{min}$ .으로 고정시켰다. V/III 비는 약 690이고, 반응기의 압력은 300 torr 이었다.

약 26 nm에서 130 nm까지의 GaN 완충층을 각각의 조건에서 성장한 후 온도를 1100 $^\circ\text{C}$ 까지 올려 GaN 에피층을 성장하지 않고 온도를 상온으로 다시 냉각시켜 반응기에서 시편을 꺼내어 AFM을 측정하여 두께가 다른 각각의 GaN 완충층의 표면 형상 및 거칠기를 관찰하였다. GaN 에피층의 표면 형상은 SEM으로 관찰하였고, 결정성을 분석하기 위해 DCXRD와 상온에서  $\text{Ar}^+$  레이저 ( $\lambda=514.5 \text{ nm}$ ) 100 mW의 출력을 사용하여 Raman spectroscopy를 측정하였다. 또한 GaN 에피층의 광학적 특성을 확인하기 위하여 He-Cd 레이저 ( $\lambda=325 \text{ nm}$ )를 사용하여 PL을 측정하였다. PL측정에 사용된 레이저의 여기 광밀도는 6  $\text{W}/\text{cm}^2$  이었다.

## 3. 결과 및 고찰

약 26 nm에서 130 nm까지의 두께를 가지는 GaN 완충

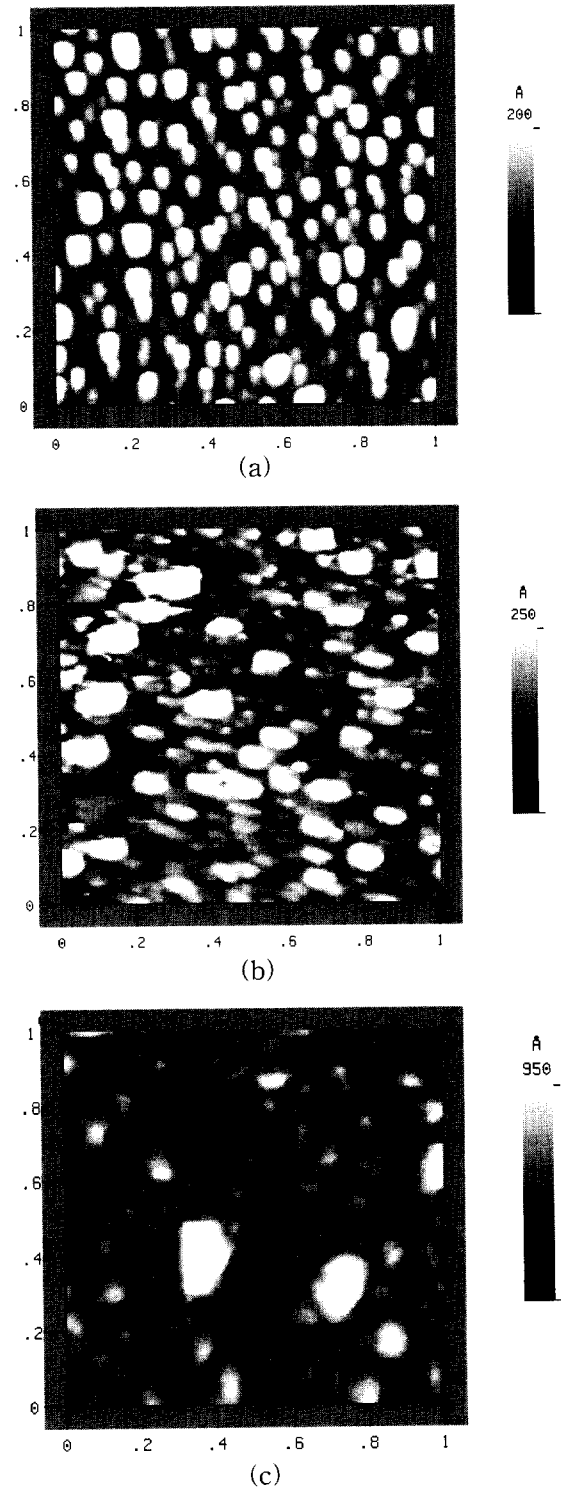


Fig. 1. AFM images of the GaN buffer layers on sapphire (0001). Thickness of GaN buffer layer is (a) 26 nm, (b) 64 nm and (c) 130 nm.

층을 성장한 후 AFM으로 측정된 표면 사진이 그림 1에 나타나 있다. 그림에서 GaN 완충층의 두께가 두꺼워짐에 따라서 grain들의 크기가 커지는 것을 볼 수 있다. 이에 대한 GaN 완충층의 표면 거칠기를 보기 위하여 그림 2에서는 AFM 측정을 통한 완충층의 RMS (root mean

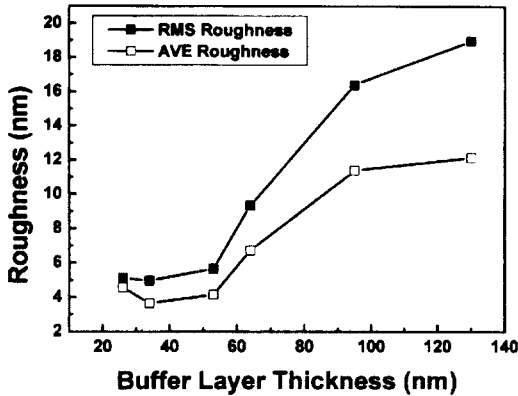


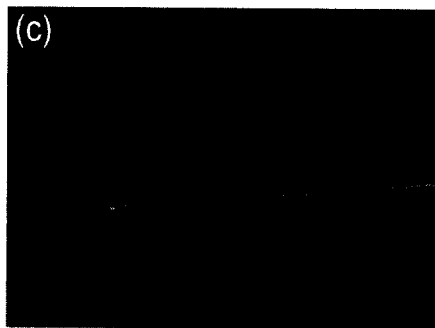
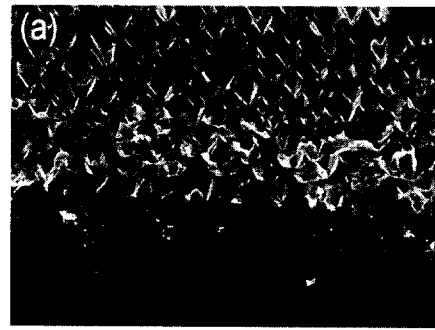
Fig. 2. RMS and AVE roughness of surface roughness according to each thickness of GaN buffer layer.

square) 표면 거칠기 값과 AVE (average) 표면 거칠기 값을 나타내었다. 그림 2에서 표면 거칠기는 완충층의 두께가 60 nm 이상이 되었을 때 급격히 증가함을 볼 수 있는데, 이것은 완충층의 두께가 26 nm에서 60 nm까지는 크기가 작은 grain들이 기판을 균일하게 덮고 있다가 완충층의 두께가 60 nm이상이므로 증가함에 따라 크기가 큰 grain들로 인해서 완충층의 표면 거칠기가 증가하는 것이라고 볼 수 있다.

그림 3은 완충층의 두께와 그에 따른 표면 형상이 GaN 에피층의 특성에 미치는 효과를 조사하기 위하여 약 26 nm에서 130 nm까지의 두께를 가진 완충층 위에 동일한 조건에서 약 4 μm의 두께를 갖는 GaN 에피층을 성장하여 에피층의 표면 형상을 SEM으로 관찰한 것이다. 그림에서 GaN 완충층의 두께가 증가함에 따라 GaN 에피층 성장시 3-dimensional (3-D) 성장보다는 2-D 성장이 촉진되어 표면이 매끈해 지는 것을 볼 수 있다.

위의 실험 결과들을 기존의 연구보고<sup>10)</sup>와 비교하여 분석해보면, 본 실험에서의 두께가 두꺼운 완충층이 기판 위에 같은 방향으로 에피층이 성장되기 위한 핵생성 위치를 제공하고, 기판과 에피층 계면에서의 자유 에너지를 감소시켜 측면성장을 촉진시키는 중요한 역할을 하고 있음을 알 수 있다. 또한 에피층의 측면성장을 위해서는 크기가 큰 2-D grain들이 필요하고, 그로 인하여 표면 거칠기가 증가하여 에피층 성장시 자유 에너지를 감소시킨다는 연구보고<sup>11)</sup>와도 일치하여 GaN 에피층의 표면 형상은 완충층의 두께 및 표면 형상과 밀접한 관계가 있다는 것을 알 수 있다. 따라서 GaN 에피층의 측면성장을 촉진시키기 위해서는 크기가 큰 grain들이 필요하고, 격자 부정합으로 인하여 생성된 탄성 변형 에너지가 완화되기 위하여 완충층이 일정 두께 이상으로 성장되어야 한다.

그림 4는 GaN 완충층의 두께가 GaN 에피층의 결정성에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 GaN (0002) peak에서의 X-ray rocking curve와 full width at half maximum (FWHM)을 나타낸 DCXRD 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯이 GaN 완충층의 두께가 두꺼워 질수록 GaN (0002) peak에서의 X-ray rocking curve의 FWHM이



50 μm

Fig. 3. SEM images of the GaN epilayers on sapphire (0001). Thickness of GaN buffer layer is (a) 26 nm, (b) 64 nm and (c) 130 nm.

감소한다. 기존의 연구결과<sup>12)</sup>에서 GaN (0002) peak에서의 X-ray rocking curve의 FWHM이 250~650 arcsec 인 것과 비교하여 볼 때 이것은 완충층의 두께가 증가함에 따라 자유 에너지가 감소하여 에피층의 측면성장이 이루어져 GaN 에피층의 결정성이 좋아진다는 것을 나타내는 결과이다.

한편 성장된 GaN 에피층의 내부 잔류응력을 조사하기 위하여 GaN 완충층의 두께에 따른 GaN 에피층의 내부 잔류응력을 알아보기 위하여 Raman spectroscopy 측정 결과를 그림 5에 나타내었다. 그림에서 Ref.는 sapphire (0001) 기판 위에 hydride vapor phase epitaxy (HVPE) 방법으로 300 μm 두께로 성장된 GaN 에피층에서 측정된 Raman spectroscopy 결과이다. 이 시료는 층

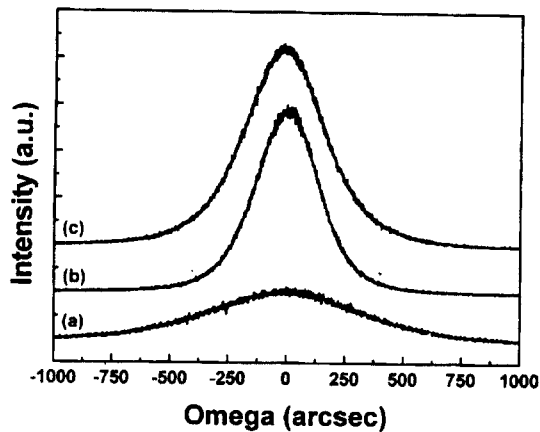


Fig. 4. X-ray rocking curves of the (0002) peaks of the GaN on sapphire (0001) with the thickness of buffer layer (a) 26 nm (FWHM = 858.5 arcsec), (b) 64 nm (FWHM = 393.4 arcsec) and (c) 95 nm (FWHM = 300.7 arcsec).

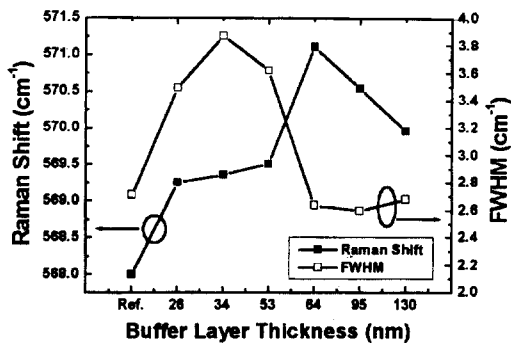


Fig. 5. Raman shift and FWHM of the  $E_2$  mode of GaN on sapphire (0001).

분한 두께로 성장되어 있기에 기판의 영향을 거의 받지 않아 내부의 잔류응력이 존재하지 않는다고 보고 나머지 시료와의 비교 자료로 삼았다. 그리고 잔류응력의 시료간 차이를 알아보기 위해 점군  $C_6$ 에 속하는 GaN의 가장 강한 신호인  $E_2$  포논에 대해서만 조사하였다. 보통 시료내의 잔류응력의 크기는 기준 신호로부터의 변이크기에 선형적으로 비례한다.

$$K_\lambda = -4.51 (cm^{-1}/GPa) \sigma \quad (1)$$

여기에서  $K_\lambda$ 는 포논 모우드의 진동수와 변형력 간의 선형 변형 인자이며,  $\sigma$ 는 잔류응력을 나타낸다.<sup>13)</sup> 그림 5에서는 GaN 완충층의 두께가 증가함에 따라 내부 잔류응력이 증가하는 반면 FWHM이 감소하여 결정성이 좋아지는 결과를 나타내고 있다. 이것은 완충층의 두께가 두꺼워지면 에피층 성장시 측면성장이 이루어지면서 결정성은 좋아지는 반면, 측면성장이 이루어지는 과정에서 잔류응력이 발생하게 된 결과로 해석된다. 반대로 완충층의 두께가 얇은 에피층의 경우 기판과의 부정합에 의해 생성된 탄성 변형 에너지를 완충층에서 충분히 해소시키지 못하여 에피층에 그 에너지의 일부가 전달되어 에피층 성장시 측면성장이 이루어지지 않아 3-D 성장으로 인하여 다결정성질을 지니게

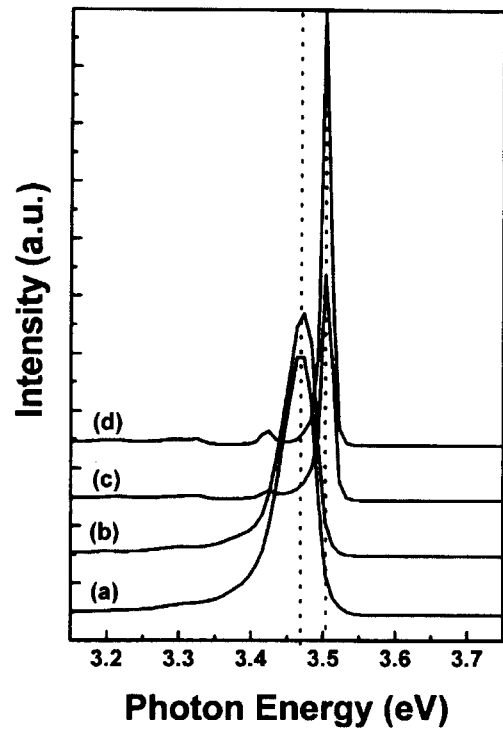


Fig. 6. Low temperature (15K) PL spectrum of GaN on sapphire (0001) with the thickness of buffer layer (a) 26 nm (FWHM = 47.7 meV), (b) 53 nm (FWHM = 42.6 meV), (c) 64 nm (FWHM = 12.5 meV) and (d) 130 nm (FWHM = 10.3 meV).

되어 내부 잔류응력은 적은 반면, 그 결정성은 떨어지는 결과를 본 실험에서 보였다.

완충층의 두께에 따른 GaN 에피층의 광학적 특성을 분석하기 위하여 15K에서 측정된 저온 PL 측정 결과를 그림 6에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 GaN 완충층의 두께가 증가하면서 GaN 에피층 표면이 매끈해 짐에 따라 엑시톤 peak의 FWHM이 감소하는 결과로 에피층의 발광특성은 좋아진다고 볼 수 있지만, 밴드갭의 폭이 약 3.47 eV에서 3.5 eV 이상으로 증가하는 결과가 나타났다. 위의 Raman spectroscopy 측정결과와 비교하여 보면, 이 결과는 완충층의 두께가 두꺼워지면서 내부 자유 에너지가 감소하여 에피층 성장시 측면성장이 이루어지면서 잔류응력이 증가하여 GaN 밴드갭의 폭을 변화시킨 것이라 볼 수 있다. 따라서 이 PL 분석결과는 Raman spectroscopy 분석결과와 잘 일치한다.

#### 4. 결 론

AFM 및 SEM은 GaN 완충층의 두께에 따른 표면 거칠기가 GaN 에피층의 표면 형상에 미치는 영향을 조사하기 위해 이루어졌다. 그 결과 GaN 완충층의 두께가 증가함에 따라 GaN 에피층의 측면성장을 촉진시키는 크기가 큰 grain들이 생성되었고, 완충층 표면이 거칠어져 에피층 성장시 자유 에너지가 감소하여 에피층의 표면이 매끈해지는 것을 알았다. 그리고 완충층의 두께가 두꺼워짐에 따라 격자 부정합에 의한 탄성 변형 에너지가 완화되어 GaN 에피

층의 표면이 매끈해지면서 결정성이 좋아지는 결과가 나왔다. 그러나 GaN 완충층의 두께가 두꺼워 질수록 GaN 에피층의 결정성은 좋아지나, 측면성장으로 인하여 잔류응력이 증가하는 결과를 Raman spectroscopy과 PL을 측정하여 얻었다.

감사의 글

본 연구는 산자부 중기저점과제(2M10011)의 지원을 받아 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. S. Strite and H. Morkoc, J. Vac. Sci. Technol. **B10**, 1237 (1992).
2. I. Akasaki and H. Amano, J. Electrochem. Soc. **141**, 2266 (1994).
3. R. F. Davis, Physica, **B185**, 1 (1993).
4. 이철수, 물리학과 첨단 기술, Dec. pp. 33-38 (1994).
5. C.-Y. Hwang, P. Lu, W. E. Mayo, Y. Lu and H. Liu, Mat. Res. Soc. Sym. Proc. **326**, 347 (1994).
6. S. Chadda, M. Pelcynski, K. Malloy, S. Hersee, Liu,

- Mat. Res. Soc. Sym. Proc. **326**, 353 (1994).
7. D. Byun, G. Kim, D. Lim, D. Lee, I.-H. Choi, D. Park and D.-W. Kum, Thin Solid Films, **289**, 256 (1996).
8. H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki and Y. Toyoda, Appl. Phys. Lett. **48**, 353 (1986).
9. S. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1705 (1991).
10. A. Fisher, H. Kuhne and H. Richter, Phys. Rev. Lett. **73**, 2712 (1994)
11. D. L. Smith, Thin-Film Deposition : Principle and Practice, McGraw-Hill, New York, **Chapter 5** (1992).
12. K. S. Kim, S. S. Oh, K. J. Lee, G. M. Yang, C.-H. Hong, K. Y. Lim, H. J. Lee and A. Yoshikawa, J. Appl. Phys. **85**, 8441 (1999).
13. E. K. Koh, Y. J. Park, E. K. Kim, C. S. Park, S. H. Lee, J. H. Lee and S. H. Choh, J. Crystal Growth, **218**, 214 (2000).