

In-situ SiN 박막을 이용하여 성장한 GaN 박막 및 LED 소자 특성 연구

A Study of Properties of GaN and LED Grown using In-situ SiN Mask

김덕규^{1,a}, 유인성¹, 박춘배¹
(Deok-Kyu Kim^{1,a}, In-Sung Yoo¹, and Choon-Bae Park¹)

Abstract

We have grown GaN layers with in-situ SiN mask by metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) and study the physical properties of the GaN layer. We have also fabricate PN junction light emitting diode (LED) to investigate the effect of the SiN mask on its optical property. By inserting a SiN mask, (102) the full width at half maximum (FWHM) decreased from 480 arcsec to 409 arcsec and threading dislocation (TD) density decreased from $3.21 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ to $9.7 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. The output power of the LED with a SiN mask increased from 198 mcd to 392 mcd at 20 mA. We have thus shown that the SiN mask improved significantly the physical and optical properties of the GaN layer.

Key Words : SiN mask, Metal organic chemical vapor deposition (MOCVD), (102) FWHM, TD density, Output power

1. 서 론

GaN계 반도체가 light emitting diodes (LEDs), laser diodes (LDs), ultraviolet (UV) detector 그리고 전자소자 제조를 위한 소재로 각광을 받고 있다[1,2]. 특히, LED 분야는 기존 조명시장을 대체할 차세대 조명으로서 부각되고 있으며 그시장 규모 또한 매년 기하급수적으로 증가하고 있고 선진국을 비롯한 여러 나라에서 LED 원천기술 확보를 위해 노력하고있다. 1986년 Amano에 의한 2-step 성장 방법은 GaN의 결정질을 향상 시켰으며 소자로서의 응용 가능성을 크게 하였다. 많은 연구자들은 GaN와 Sapphire 기판사이의 격자불일치와 열팽창계수 차이에 의해 발생하는 threading dislocation (TD)을 줄이기 위해 epitaxial lateral

overgrowth (ELO)[4], pendeo epitaxy(PE)[5], selective area growth(SAG)[6]와 같은 새로운 방법을 연구하였다. TD를 감소시키는 것은 소자의 수명을 길게하고 소자 특성을 향상 시키기 위해 꼭 필요하다. 그러나, ELO 기술은 복잡한 공정을 요구한다.

최근 들어, SiN 활성층을 이용하는 성장 방법이 ELO 기술의 대안으로 연구되고 있다[7-9]. Lahreche와 그의 공동연구자들은[7] GaN 표면에 silane 처리를 함으로서 GaN의 표면 에너지를 변화시켜 3D 성장모드를 유도하였다. Tanaka와 그의 공동연구자들은 비활성화제인 Si 처리를 통한 GaN 양자점과 전위중단현상을 보고하였다[8]. Sakai와 그의 공동연구자들은 Sapphire 위에 SiN 막을 바로 증착하고 얇은 SiN 막 위에 nanometer 사이즈의 hole 이 있음을 발견하였다[9]. 이들 연구자들은 SiN 막이 TD 밀도를 $10^9 \sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 에서 $10^7 \sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 로 감소시킨다고 결론지었다.

본 논문에서는 in-situ SiN 활성층을 이용하여 GaN 막을 성장시키고 atomic force microscopy (AFM), x-ray rocking curve (XRC), 그리고

1. 원광대학교 전기전자 및 정보공학부
(전북 익산시 신용동 344-2)
a. Corresponding Author : maruchi11@lycos.co.kr
접수일자 : 2005. 7. 12
1차 심사 : 2005. 8. 23
심사완료 : 2005. 9. 7

transmission electron microscopy (TEM) 측정을 통해 물성적 특성을 연구하였다. 또한 광학적 특성을 관찰하기 위해 PN 접합 LED를 제작하고 output power를 측정하였다.

2. 실험

GaN 막은 metal organic chemical vapor deposition (MOCVD)에 의해 성장되었다. GaN 막은 TMGa와 NH₃를 소스가스로 H₂를 캐리어 가스로 사용하여 성장 압력 200 ~ 500 Torr, 성장온도 1060 ~ 1090 °C에서 성장하였다. 처음에 sapphire 기판은 H₂ 분위기에서 1080 °C로 열처리되었다. 그리고 나서 Low Temperature(LT) GaN buffer 층을 530 °C에서 성장시키고 High Temperature(HT) GaN를 성장시키기 위해 1060 °C로 온도를 올렸다. HT GaN을 약 1 μm 정도 성장 시킨 후 얇은 SiN 막을 SiH₄와 NH₃ 소스가스와 H₂ 캐리어 가스를 이용하여 800 °C, 500 Torr에서 증착하였다. 이때, SiN 증착 시간을 45초, 1분, 5분으로 변화하였다. 그 후에 다시 HT GaN을 6분(~200 nm) 동안 재성장시키고 AFM 관찰을 하였다. XRC특성 관찰을 위해 SiN 막위에 약 1 μm의 GaN을 성장하였고 전체적인 GaN의 두께는 약 2 μm 이었다. SiN 막위에 완전한 GaN막을 성장시키기 위해 GaN의 합체(coalescence)는 암모니아 양을 증가시키고 압력을 감소시켜 30분에 달성되도록 하였다. SiN 막이 없는 샘플에서도 GaN 두께를 약 2 μm 성장하여 비교분석 하였다. 이렇게 성장한 GaN 위에 2 μm NGaN과 0.5 μm PGaN을 성장시켜 LED 구조를 성장하였다. LED 소자제작을 위해 포토작업후 inductively coupled plasma (ICP)를 이용하여 건식식각하였고 P 전극으로 Ni/Au (5 nm/6 nm) 그리고 N 전극으로 Ti/Al/Ni/Au(25 nm/150 nm/25 nm/150 nm)을 증착하였다. 마지막으로 Pad 전극으로 Au(400 nm)을 N, P 전극위에 증착시킨 후 공기중에서 500 °C, 20분간 열처리하여 소자제작을 하였다. 제작된 LED 칩 크기는 340×340 μm² 이었고 칩은 패키징후 측정되었다.

SiN 증착 시간에 따른 GaN 표면 형상을 보기 위해 AFM 관찰을 하였다. GaN 단면구조를 관찰하기 위해 TEM 측정을 하였다. SiN 증착 후 GaN 성장 과정을 보기위해 600 nm 파장의 in-situ reflectometry 측정을 하였다. 그리고 구조적 특성 측정을 위해 XRC 측정을 하였다. 또한, LED output power는 black cavity 속에서 LED meter를 이용하여 측정하였다. 모든 측정 결과는 5포인트씩 측정하여 평균적인 값을 취하였다.

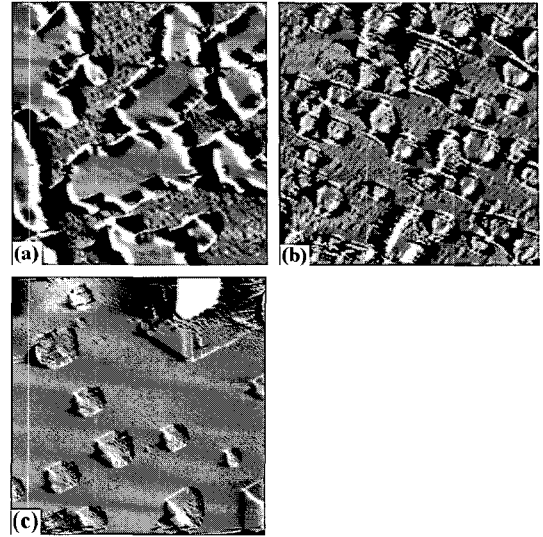


그림 1. SiN 증착 시간에 따른 GaN의 AFM 표면 형상. (a) 45초, (b) 1분, (c) 5 분. 스캔영역은 10×10 μm².

Fig. 1. AFM images of 6-minute grown GaN layer on top of the (a) 45 s, (b) 1 min and (c) 5 min grown SiN masks. The scan area of images are 10×10 μm².

3. 결과 및 고찰

그림 1은 SiN 활성층 증착 시간에 따른 GaN 표면형상의 AFM 이미지를 관찰한 것이다. SiN 증착 시간은 45초, 1분, 5분으로 변화를 주었다. 표면형상을 관찰하기 위해, SiN 증착 후 GaN를 6분(~200 nm) 성장 시켰다. 45초 경우에(그림 1(a)), GaN island들이 형성되었고 이웃 island들과 합체가 진행되고 있음을 알 수 있다. SiN 활성층에 대한 GaN island들의 면적비는 대략 44.5 %이었다. GaN island들의 합체때문에 GaN island의 밀도는 계산할 수 없었다. 1분인 경우에(그림 1(b)), 대부분의 GaN island들이 독립적으로 형성 되어 있고 SiN 활성층에 대한 GaN island들의 면적비는 대략 36 %이었고 GaN island의 밀도는 대략 5×10⁷ cm⁻² 이었다. 5분인 경우에 (그림 1(c)), GaN island의 밀도는 앞의 두 경우에 비해 크게 감소하였다. SiN 활성층에 대한 GaN island들의 면적비는 대략 35 %이었고 밀도는 2×10⁷ cm⁻² 이었다. 1분 이상의 SiN 활성층 증착 시간에서는 GaN island들이 감소되는 현상이 나타나는데 이는

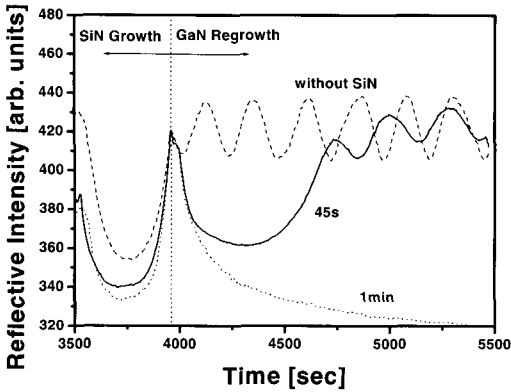


그림 2. SiN 막을 삽입하지 않은 샘플과 SiN 막을 45초, 1분 증착후 GaN 재성장 동안 측정된 reflectometry signal.

Fig. 2. Reflectometry signal of sample without SiN and samples recorded during 45 s and 1 min SiN deposition followe GaN regrowth.

nanometer-sized hole의 감소에 기인한다. Sakai의 보고에 의하면 GaN island는 nanometer-sized hole을 통해 성장한다고 보고하였다[9]. 이 nanometer-sized hole은 SiN 증착 시간이 너무 짧으면 형성되지 않고 임계시간을 초과하면 점차적으로 사라진다. 이런 경향은 이번 실험에서도 관찰되었다.

그림 2는 SiN 증착 시간에 따른 in-situ reflectometry 측정 결과이다. reflectometry signal들은 GaN가 재성장이 일어나는 때를 기준으로 정렬하였다. SiN 막을 삽입하지 않은 샘플에서는 GaN 재성장이 시작되면서 완전한 파형이 나타났다. SiN 막을 삽입한 샘플의 signal 강도는 초기에 감소를 하는데 이는 SiN 막 생성에 의한 3D GaN island의 형성에 기인한다[10]. 계속 성장이 이루어지면 이 3D GaN island들이 합체되어 강도가 증가하게 된다. 45초 이상의 증착 샘플에서 30분안에 GaN island들이 합체되도록 만들기위해 NH₃ 양, 성장 온도와 압력을 조절하였다[11]. 그러나, 온도를 증가 시키면 GaN 표면에 많은 작은 언덕(hillock)들이 발생하였다. 따라서, 압력과 NH₃ 양을 변화하여 30분 안에 합체가 이루어지도록 하였다. 45초인 경우에 30분안에 합체가 이루어졌지만 1분 이상에서는 합체가 진행되고 있었다. 이 현상은 GaN island의 밀도에 기인한다.

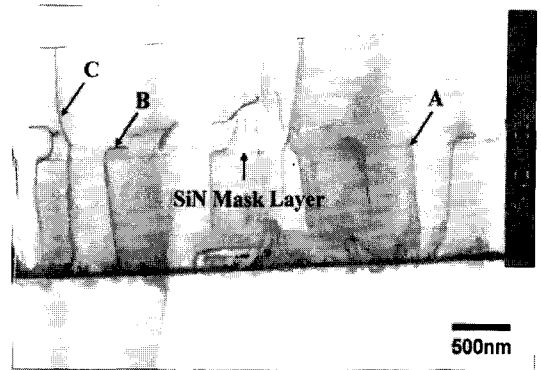


그림 3. SiN를 45초 증착한 샘플의 TEM 단면.
Fig. 3. Cross-sectional TEM image of GaN layer grown on top of the 45 s deposited SiN mask.

SiN 활성층 위에 재성장한 GaN 막의 특성을 관찰하기위해 45초 증착 샘플 위에 1 μm 정도의 GaN 막을 재성장 하고 TEM, XRC 특성을 관찰하였다.

그림 3은 45초 증착시간을 가진 SiN 활성층 위에 성장한 GaN 단면 TEM 사진이다. SiN 증착 전과 후의 threading dislocation (TD) 밀도의 변화를 관찰할 수 있다. GaN의 TD 밀도는 SiN 증착 전후 3.21×10⁹ cm⁻²에서 9.7×10⁸ cm⁻²로 감소하였다. 보고에 의하면 SiN 성장 조건을 최적화 하면 TD 밀도를 2 ~ 3×10⁸ cm⁻²까지 줄일 수 있다고 한다. SiN 활성층 폭은 약 33 nm ~ 45 nm 이었다. TEM 단면을 보면 SiN 활성층의 마스크 효과에 의해 TD가 3가지 형태로 나타나는데 SiN 활성층에 의한 차단 (A), GaN 재성장예 의한 구부러짐 (B) 그리고 초기에 발생한 TD가 재성장한 표면까지 전달 (C)된 형태를 보인다.

그림 4는 SiN 활성층을 삽입하지 않은 샘플과 삽입한 샘플의 XRC 특성을 나타낸다. SiN 활성층을 삽입하지 않은 샘플의 (102) FWHM은 480 arcsec 이었고 삽입한 샘플의 (102) FWHM은 409 arcsec 이었다. 즉, SiN 활성층 삽입으로 인해 TD 밀도가 감소하였고 TD 밀도 감소로 인해 GaN의 결정성 또한 향상 되었다. 이 결과는 SiN 활성층을 삽입한 샘플이 그렇지 아니한 샘플보다 광학적으로 우수함을 나타낸다.

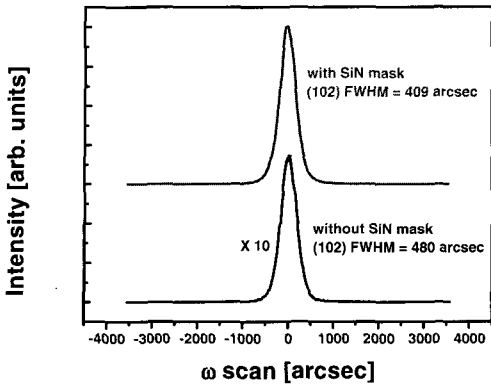


그림 4. SiN를 45초 증착한 GaN와 증착하지 않은 GaN 박막의 (102) FWHM.

Fig. 4. (102) FWHM of GaN layer with or without SiN mask for 45 s deposition time.

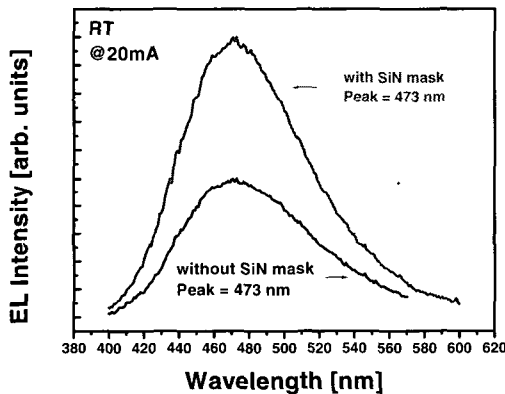


그림 5. SiN를 45초 증착한 GaN와 증착하지 않은 샘플의 EL 특성.

Fig. 5. The EL property of GaN with or without SiN mask for 45 s deposition time.

따라서, SiN 활성층 삽입여부에 따른 광학적인 특성을 관찰하기 위해 LED 소자를 제작하였고 LED 소자의 output 특성을 측정하였다. 그림 5는 SiN 활성층을 삽입한 LED와 삽입하지 않은 LED의 electroluminescence (EL) 특성이다. 20 mA에서 측정된 output power는 SiN 활성층을 삽입한

LED에서 392 mcd 그리고 삽입하지 않은 LED에서 198 mcd 이었다. 이때, 두 LED의 파장은 20 mA에서 473 nm로 동일하였다. SiN 활성층을 삽입한 샘플의 output power가 삽입하지 않은 샘플보다 2배 이상 높았다. 이 현상은 SiN 활성층이 GaN와 Sapphire 사이에서 생기는 TD의 진행을 막음으로서 상위 표면에서의 TD 밀도를 감소시키기 때문이다. 즉, TD는 non-radiative center로서 작용함을 알 수 있다[12]. LED 소자응용을 위해 168시간 aging 테스트를 해본결과 테스트 전·후 특성에 큰 차이가 없었다. 따라서, SiN 활성층을 이용한 GaN 성장 방법은 발광층으로 GaN를 이용하는 UV 소자에 응용가능하다.

4. 결론

In-situ SiN Mask를 이용하여 GaN 박막을 MOCVD 방법으로 성장하고 그 박막의 특성을 연구하였다. SiN 박막의 성장시간을 45초부터 5분까지 변화하였으며 45초에서 최적의 성장 조건을 얻었다. SiN 활성층을 삽입하므로 (102) FWHM을 480 arcsec에서 409 arcsec로 감소시켰고 TD 밀도는 $3.21 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 에서 $9.7 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 로 감소하였다. SiN 활성층을 삽입한 샘플의 PL특성도 강도가 2배 정도 향상 되었다. SiN 박막이 GaN의 광학적 특성을 향상 시키므로 고휘도 LED 제작에 응용 가능하다.

감사의 글

이 논문은 산업자원부에서 시행하는 대학전력연구센터 육성·지원사업(I-2004-0-074-0-00)에 의해 작성되었습니다.

참고 문헌

- [1] S. Nakamura and G. Fasol, "The Blue Laser Diode GaN Based Light Emitters and Lasers", Springer, Berlin, p. 163, 1997.
- [2] M. S. Shur, "GaN based transistors for high power applications", Solid-State Electron. Vol. 42, No. 12, p. 2131, 1998.
- [3] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Totoda, "Metalorganic vapor phase epitaxial

- growth of a high quality GaN film using an AlN buffer layer", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 48, No. 5, p. 353, 1986.
- [4] A. Ushi, H. Sunakawa, A. Sakai, and A. Yamaguchi, "Thick GaN epitaxial growth with low dislocation density by hydride vapor phase epitaxy", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 36, No. 7B, p. L899, 1997.
- [5] R. F. Davis, T. Gehrke, K. J. Linthicum, T. S. Zhelva, E. A. preble, P. Rajagopal, C. A. Zorman, and M. Mehregany, "Pendeo-epitaxial growth of thin films of gallium nitride and related materials and their characterization", *J. Crystal Growth*, Vol. 225, No. 2-4, p. 134, 2001.
- [6] Y. Kawaguchi, Y. Honda, H. Matsushima, M. Yamacuchi, K. Hiramatsu, and N. Sawaki, "Selective area growth of GaN on Si substrate using SiO₂ mask by metalorganic vapor phase epitaxy", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 37, No. 8B, p. L966, 1998.
- [7] H. Lahreche, P. Vennegues, B. Beaumont, and P. Gibart, "Growth of high-quality GaN by low-pressure metal-organic vapour phase epitaxy (LP-MOVPE) from 3D islands and lateral overgrowth", *J. Crystal Growth*, Vol. 205, No. 3, p. 245, 1999.
- [8] S. Tanaka, M. Takeuchi, and Y. Aoyagi, "Anti-surfactant in III-nitride epitaxy", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 39, No. 8B, p. L831, 2002.
- [9] S. Sakai, T. Wang, Y. Morishima, and Y. Naoi, "A new method of reducing dislocation density in GaN layer grown on sapphire substrate by MOVPE", *J. Crystal Growth*, Vol. 221, No. 1-4, p. 334, 2000.
- [10] S. Figge, T. Bottcher, S. Einfeldt, and D. Hommel, "In situ and ex situ evaluation of the film coalescence for GaN growth on GaN nucleation layers", *J. Crystal Growth*, Vol. 221, No. 1-4, p. 262, 2000.
- [11] H. Miyake, A. Motogaito, and K. Hiramatsu, "Effects of reactor pressure on epitaxial lateral overgrowth of GaN via low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy", *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. 38, No. 9A/B, p. L1000, 1999.
- [12] S. J. Rosner, E. C. Carr, M. J. Ludowise, G. Girolami, and H. I. Erikson, "Correlation of cathodoluminescence inhomogeneity with microstructural defects in epitaxial GaN grown by metalorganic chemical-vapor deposition", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 70, No. 4, p. 420, 1997.