

AlN/PSS Template 위에 HVPE로 성장한 GaN 막의 특성

손호기¹, 이영진¹, 이미재¹, 김진호¹, 전대우^{1,a}, 황종희¹, 이혜용²

¹ 한국세라믹기술원 광·디스플레이소재센터

² 루미지엔테크

Properties of GaN Film Grown on AlN/PSS Template by Hydride Vapor Phase Epitaxy

Hoki Son¹, YoungJin Lee¹, Mijai Lee¹, Jin-Ho Kim¹, Dae-Woo Jeon^{1,a}, Jonghee Hwang¹, and Hae-Yong Lee²

¹ Optic & Display Materials Center, Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

² LumiGNtech Co., SK Techno Park, Gwangmyeong 14322, Korea

(Received March 31, 2016; Revised May 24, 2016; Accepted May 24, 2016)

Abstract: In this paper, GaN film was grown on AlN/PSS by hydride vapor phase epitaxy compared with GaN on planar sapphire. Thin AlN layer for buffer layer was deposited on patterned sapphire substrate (PSS) by metal organic chemical vapor deposition. Surface roughness of GaN/AlN on PSS was remarkably decreased from 28.31 to 5.53 nm. Transmittance of GaN/AlN grown on PSS was lower than that of planar sapphire at entire range. XRD spectra of GaN/AlN grown on PSS corresponded the wurzite structure and c-axis oriented. The full width at half maximum (FWHM) values of ω -scan X-ray rocking curve (XRC) for GaN/AlN grown on PSS were 196 and 208 arcsec for symmetric (0 0 2) and asymmetric (1 0 2), respectively. FWHM of GaN on AlN/PSS was improved more than 50% because of lateral overgrowth and AlN buffer effect.

Keywords: GaN, PSS, HVPE, Refractive index

1. 서 론

갈륨 나이트라이드 (gallium nitride, GaN)는 1990년 이후로 꾸준히 많이 연구가 이루어지고 있는 반도체 재료이다. 광전자기기인 레이저 다이오드 (laser diode)와 발광 다이오드 (light emitting diode)에 적합한 재료이다. 3.4 eV의 넓은 밴드갭 에너지, 높은 열안정성, 열전도도의 물성을 가지고 있어 고온에서 작

동되는 전자기기에 이용할 수 있다 [1-4]. 위와 같은 장점 때문에 GaN-based LED 분야에서 계속해서 연구가 되고 있으며 [5], 다양한 성장법이 이용되고 있다. 대표적인 GaN 막 성장법으로는 MOCVD (metal organic chemical vapor deposition)와 ammonothermal 과 HVPE (hydride vapor phase epitaxy)가 있다. 앞의 두 가지 성장방법은 결정성은 좋지만 성장 속도가 매우 느리고, 장비 유지비용도 많이 든다. HVPE는 유지비용이 적으며, 성장 속도가 빠르기 때문에 양산 장비로 적합하다.

최근에는 GaN-based LED에서는 기판으로 planar sapphire 기판을 쓰지 않고 광 추출 효율 (light emission efficiency, LEE)을 향상시키는 PSS

a. Corresponding author; dwjeon@kicet.re.kr

(patterned sapphire substrate)를 사용하는 추세이다. 일반적인 GaN 막을 이종기판 위에 성장하면 열팽창계수 차이와 격자 상수 차이 때문에 $10^9/\text{cm}^2$ 의 높은 쓰레딩 결함 밀도(TDD)를 가진다. 높은 결함 밀도는 이론적 물성보다 좋지 않은 물성을 갖게 만든다. 이와 같은 문제를 해결하기 위해서 측면성장 방법(epitaxial lateral overgrowth, ELOG)이 활용되고 있다 [6]. 측면성장 방법은 쓰레딩 결함을 효과적으로 감소시킨다. PSS는 측면 성장을 촉진시키고, 막의 표면으로 진행되는 쓰레딩 결함의 진행 방향을 바꿔줘서 결함 밀도를 현저하게 감소시키는 역할을 한다. 또한 빛의 경로인 광 탈출 원뿔(light escape cone)을 넓혀줘서 후방 산란하는 빛을 많이 방출하여 광 추출효율을 증가시켜 외부 양자효율(external quantum efficiency, EQE)을 개선시킨다 [7,8]. 그러나 아직까지 HVPE를 이용하여 고품질의 GaN 막을 PSS에 성장하는데 어려움이 있다. 이론적으로 AlN 박막은 PSS와 GaN 막의 격자상수차이와 열팽창계수 차이를 줄여줘 고품질 GaN 막을 성장할 수 있게 도와준다 [9].

본 연구에서는 AlN/PSS 위에 HVPE 방법으로 고품질의 GaN 막을 성장하고 그 특성을 평가하였다.

2. 실험 방법

그림 1은 PSS의 표면을 나타낸 AFM 이미지이다. PSS 표면에 원뿔형 모양은 GaN 막을 성장할 때 측면 성장 방법이 적용되어 결정성 향상에 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 이는 곧 내부 양자효율의 증가로 이어진다 [8]. PSS 표면에 존재하는 패턴의 간격은 $2.95\ \mu\text{m}$ 높이는 $1.7\ \mu\text{m}$ 이다.

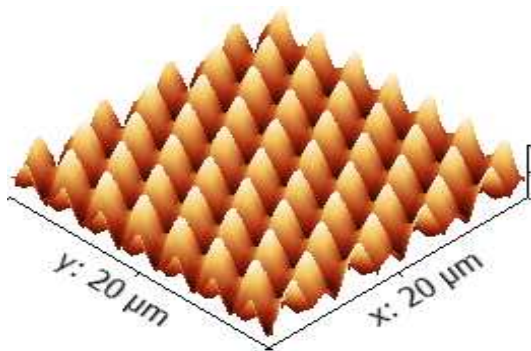


Fig. 1. AFM image of patterned sapphire substrate structure.

그 다음, PSS 위에 AlN buffer를 MOCVD로 성장하였고, AlN buffer의 두께는 $25\ \text{nm}$ 이다. 수평형 HVPE로 GaN 막을 $1,030^\circ\text{C}$ 에서 성장시켰다. AlN buffer 없이 HVPE를 이용하여 PSS 위에 성장된 GaN 막의 특성을 비교 분석하기 위해서 PSS 위에 직접 GaN 막을 성장하였으나 다결정으로 성장되어서 사용하지 못하고 (0001) 사파이어 기판 위에 AlN buffer 없이 GaN을 성장하였다.

성장된 GaN 막의 단면을 알아보기 위해 SEM을 사용하였고, 광 특성은 UV-vis와 photoluminescence을 사용하였다. 또한 GaN 막의 결정성 및 응력을 분포를 확인하기 위해서 HR-XRD (JSPM-5200, Panalytical, Netherland), Raman (NRS 3100, Jasco, Japan)을 이용하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2(a)는 AlN/PSS 위에 성장한 GaN 막을 SEM으로 단면을 측정하였다. 성장된 GaN 막의 두께는 약 $10\ \mu\text{m}$ 로 성장되었으며, 성장된 후 표면에서 균열은 보이지 않았다. GaN 막과 PSS 계면에서 패턴된 사파이어 형태를 확인할 수 있었으며, 모든 영역에서 고르게 성장되었음을 확인하였다. 그림 2(b)는 AlN/PSS 위에 성장한 GaN 막의 AFM ($20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$) 표면 이미지이다. 표면의 다수의 hillock은 관찰되었지만 사파이어 위에 성장한 GaN 막과 비교하여 RMS 값은 $28.31\ \text{nm}$ 에서 $5.53\ \text{nm}$ 로 상당히 감소되었음을 확인하였다. AlN buffer는 PSS 위에 성장 시에 표면 특성을 개선하는데 큰 효과가 있음이 확인되었다 [3].

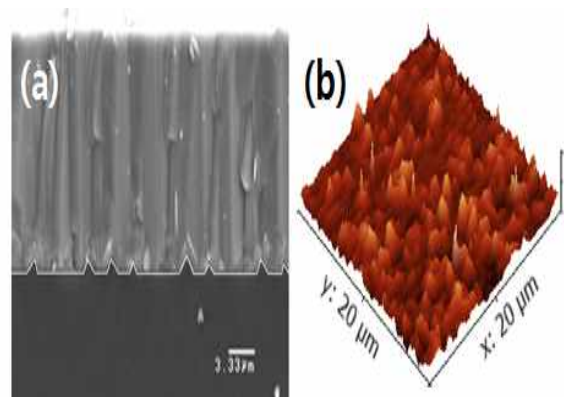


Fig. 2. Cross-sectional SEM image and surface AFM image of GaN on AlN/PSS.

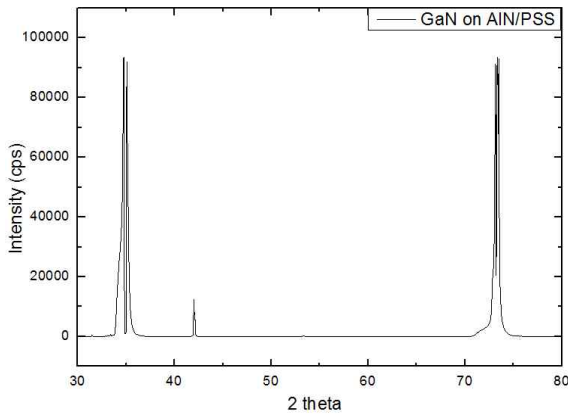


Fig. 3. XRD 2theta images of GaN on AlN/PSS.

Table 1. FWHM values of XRC of each grown GaN samples.

Substrate	FWHM (002)	FWHM (102)
GaN on sapphire	442 arcsec	498 arcsec
GaN on AlN/PSS	196 arcsec	208 arcsec

그림 3은 XRD 2theta 측정 결과이다. 3개의 강한 피크가 GaN (002), (004)는 34.5° , 72.84° 에서 나타났고, 사파이어(0006) 41.68° 에서 나타났다. GaN 막은 C 축 성장한 것과 wurzite 구조인 것을 알 수 있었다. MOCVD로 증착한 AlN buffer 피크는 확인할 수 없었는데 AlN buffer 층의 두께가 25 nm 매우 얇아서 다른 피크의 상대적인 강도 차이로 보이지 않는 것으로 판단된다.

표 1은 각 샘플에 대한 HR-XRC (high resolution X-ray rocking curve) 측정 결과에 따른 반치폭(full width at half maximum, FWHM) symmetry (002)와 asymmetry (102)을 나타내었다. Symmetry (002)는 GaN 막의 c축 방향의 변형을 관찰할 수 있어 나선형 전위 밀도를 알아볼 수 있고, asymmetry (102)는 c축과 a축의 모든 칼날형과 나선형 전위 밀도를 측정할 수 있다 [10]. 이 값을 통해서 성장된 GaN 막의 결정성을 알 수 있다. 반치폭은 AlN/PSS에서 성장하였을 때 (0001) 사파이어 위에서 성장한 GaN 막과 비교하면 symmetry (002)는 442 arcsec에서 196 arcsec로, asymmetry (102)는 498 arcsec에서 208 arcsec로 절반 이상으로 감소한 것을 확인할 수 있었다. 원인은 MOCVD로 성장한 AlN 박막은 PSS 기판과

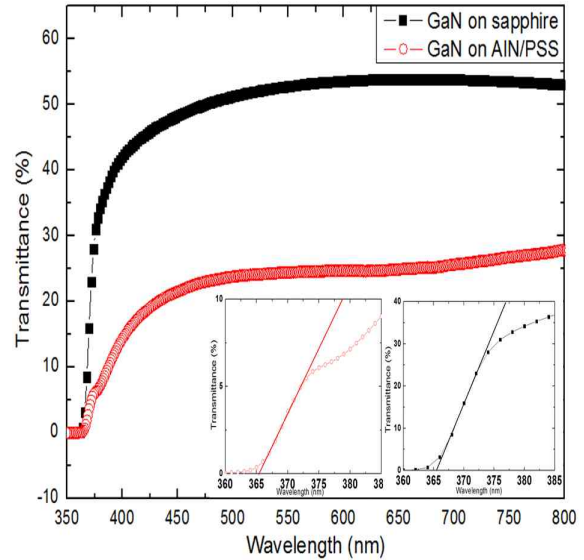


Fig. 4. UV-VIS transmittance spectrum measurement for GaN on sapphire and GaN on AlN/PSS.

GaN 막의 16%의 격자상수 차이를 AlN 박막이 2.4%로 정도로 감소하여 결정성이 향상된 것으로 사료된다 [9,11]. 또한 PSS가 측면 성장의 촉진과 생성된 전위의 진행 방향이 표면이 아닌 PSS의 패턴이 있는 곳으로 구부러짐 현상 때문에 반치폭 감소에 큰 영향을 준 것으로 생각된다 [12].

그림 4는 두 개의 샘플에 대한 투과율을 나타낸 것이다. 380 nm 파장에서 투과율은 사파이어 위에 성장한 GaN 막은 34%, AlN/PSS에서 성장한 GaN 막은 7%로 나타났다. 뿐만 아니라 모든 영역에서 AlN/PSS 위에 성장한 GaN 막의 투과율은 낮았다. 원인은 PSS 표면의 영향으로 계면에서 발생하는 후방 산란 현상이 증가하여 빛이 투과하지 못하고 [7], 입사 반대 방향인 공기 중으로 빠져나온 것으로 판단된다. PSS 위에 성장된 LED에서 나타나는 산란 효과와 일맥상통하는 결과로 판단된다. 그리고 각각의 GaN 막은 밴드갭에 따라서 흡수단을 확인할 수 있었다 [13]. 성장된 두 GaN 막의 밴드갭 차이는 거의 없었고, 이론값인 360 nm에서 인장응력에 따른 피크가 이동되는 경향을 보였다.

UV-VIS 측정에서 관찰한 잔류응력을 좀 더 관찰해 보기 위해서 잔류응력에 민감한 Raman E_2 (high) 값을 통하여 GaN 막의 응력상태를 확인하고, 값을 구하였다.

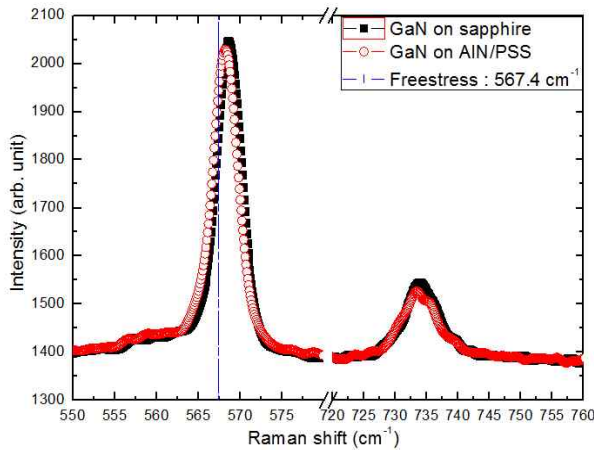


Fig. 5. Raman spectra of GaN films as a function of the substrate at room temperature. Two typical E_2 (high), A_1 (LO) mode dominate.

먼저 Raman 측정 결과 E_2 (high)와 A_1 (LO)가 나타났다. 두 개의 피크를 통해서 C축 성장한 것을 알 수 있었다. 잔류응력이 없는 상태에서의 GaN 박막의 E_2 (high) 값은 567.2 cm^{-1} 이다 [14]. 사파이어 위에 성장된 GaN 막과 AlN/PSS 위에 성장한 GaN 막의 각각의 E_2 (high) 값은 568.6 cm^{-1} , 568.2 cm^{-1} 에서 나타났다. 두 기판에서의 성장된 GaN 막은 모두 인장 응력상태로 위의 두 결과와 동일하게 나타났다. 다만 잔류응력의 크기는 달랐다. 잔류응력은 다음 식을 이용하여 구하였다.

$$\Delta\omega = K\gamma\sigma_{xx}$$

스트레스 계수 K 은 $3.39 \text{ cm}^{-1}/\text{GPa}$ 로 알려져 있다 [15]. AlN buffer 층을 사용했을 때 격자상수와 열팽창계수의 불일치가 감소하여 잔류응력이 0.23 GPa에서 0.14 GPa로 감소한 것을 계산을 통해 알 수 있었다.

4. 결론

본 연구에서는 HVPE 장비를 이용하여 AlN/PSS 위에 성장된 GaN 막의 특성을 확인할 수 있었다. AlN/PSS template 위에 성장된 GaN 막은 표면구조에서 hillock은 관찰되었지만, RMS 값은 급격히 감소

하였다. 또한, AlN buffer를 적용하여 격자상수와 열팽창계수 차이의 감소로 PSS 위에서 고품질의 GaN 막을 성장할 수 있었고, PSS 위에서의 측면 성장으로 전위 밀도가 감소하여 결정성이 향상된 것을 확인할 수 있었다. AlN/PSS 위에 성장한 GaN 막은 완전히 잔류응력이 없는 상태는 아니었지만 사파이어 기판 위에 성장된 GaN 막과 비교하여 완화된 것을 알 수 있었다. 결론적으로 AlN/PSS template는 표면구조를 변화시키고, 결정성 향상 및 잔류응력을 감소하는데 효과적인 것을 알 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No. 2015R1A6A1A03031833).

REFERENCES

- [1] M. Balaji, A. Claudel, V. Fellmann, I. Gelard, E. Blanquet, R. Boichot, A. Pierret B. Attal-Tretout, A. Crisci, S. Coindeau, H. Roussel, D. Pique, K. Baskar, and M. Pons, *J. Alloy. Compd.*, **526**, 103 (2012). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.02.111>]
- [2] K. Fujita, K. Okuura, H. Miyake, K. Hiramatsu, and H. Hirayama, *Phys. Status. Solidi. C*, **5**, 1483 (2011). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201001130>]
- [3] H. Hirayama, S. Fujikawa, J. Norimatsu, T. Takano, K. Tsubaki, and N. Kamata, *Phys. Status. Solidi. C*, **S5**, S356 (2009). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.200880958>]
- [4] T. Nagashima, M. Harada, H. Yanagi, H. Fukuyama, Y. Kumagai, A. Koukitu, and K. Takada, *J. Cryst. Growth*, **305**, 355 (2007). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2007.04.001>]
- [5] Y. Kumagai, Y. Enatsu, M. Ishizuki, Y. Kubota, J. Tajima, T. Nagashima, H. Murakami, K. Takada, and A. Koukitu, *J. Cryst. Growth*, **312**, 2530 (2010). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2010.04.008>]
- [6] K. Fujita, K. Okuura, H. Miyake, K. Hiramatsu, and H. Hirayama, *Phys. Status. Solidi. C*, **8**, 1483 (2011). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201001130>]
- [7] V. Y. Davydov, Y. E. Kitaev, I. N. Goncharuk, A. N. Smirnov, J. Gaul, O. Semchinova, D. Uffmann, M. B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, and R. A. Evarestov, *Phys.*

- Rev. B*, **58**, 12899 (1998).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.58.12899>]
- [8] W. H. Yan, L. Z. Ting, H. J. Lei, Z. L. Yi, and L. G. Qiang, *Chin. Phys. B*, **24**, 067103 (2015).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1088/1674-1056/24/6/067103>]
- [9] H. Y. Shin, Y. I. Chang, S. K. Kwon, K. T. Lee, M. J. Cho, and K. H. Park, *J. Korean Phys. Soc.*, **50**, 1147 (2007). [DOI: <http://dx.doi.org/10.3938/jkps.50.1147>]
- [10] K. H. Chang, M. S. Kwon, and S. I. Cho, *J. Institute of Industrial Technology*, **12**, 123 (2004).
- [11] G. El-Zammar, W. Khalfaoui, T. Oheix, A. Yvon, E. Collard, F. Cayrel, and D. Alquier, *Appl. Surf. Sci.*, **355**, 1044 (2015).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.07.201>]
- [12] S. R. Xu, P. X. Li, J. C. Zhang, T. Jiang, J. J. Ma, Z. Y. Lin, and Y. Hao, *J. Alloy. Comp.*, **614**, 360 (2014).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.06.113>]
- [13] M. Alevil, C. Ozgit, I. Donmez, and N. Biyikli, *J. Vac. Sci. Technol A*, **30**, 021506 (2012).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1116/1.3687937>]
- [14] C. Nootz, A. Schulte, and L. Chernyak, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 1355 (2002). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1449523>]
- [15] D. G. Zhao, S. J. Xu, M. H. Xie, and S. Y. Tong, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 28 (2003).