

Self-Separation 방법을 적용한 고품질 Free-Standing GaN

손호기¹, 이영진¹, 김진호¹, 황종희¹, 전대우^{1,a}, 이해용²

¹ 한국세라믹기술원

² 루미지엔테크

High Quality Free-Standing GaN Substrate by Using Self-Separation Method

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

¹ Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

² LumiGNtech, Gwangmyeong 14322, Korea

(Received July 28, 2016; Accepted September 26, 2016)

Abstract: We demonstrated that self-separation FS-GaN (freestanding-GaN) was grown on MELO (maskless epitaxially lateral overgrowth) GaN template by horizontal HVPE (hydride vapor phase epitaxy). Before thick GaN growth, MELO GaN template was grown on patterned GaN template by MOCVD (metal organic chemical vapor deposition). The laterally overgrown GaN would consist of a continuous well coalesced layer. The mixed TDD (threading dislocation density) of seed and wing region were $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ and $7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$, respectively. After thick GaN grown by HVPE, the self-separation between thick GaN and sapphire substrate was generated at seed region. The regions of self-separation for FS-GaN and sapphire were observed by FE-SEM. Moreover, Raman results indicated that the compressive strain of seed and wing regions at FS-GaN substrate were slightly released compared to that of thick GaN grown on conventional GaN template. The optical properties of the FS-GaN substrate were examined by using PL (photoluminescence). The PL exhibited that donor bound exciton and donor acceptor pair were observed at low temperature. The effects on optical and structural properties of FS-GaN substrate have been discussed in detail.

Keywords: FS-GaN, Self-separation, HVPE, Refractive index

1. 서 론

2014년 갈륨 나이트라이드(Gallium Nitride, GaN) 물질은 다양한 장점을 가지고 있어 이를 연구해 온 일본의 연구자가 노벨 물리학상을 수상하였다. 이처럼 갈

륨 나이트라이드는 3.4 eV의 넓은 밴드갭 에너지를 갖고 고온에서의 높은 안정성과 열전도도의 물성을 가지고 있을 뿐만 아니라 알루미늄과 인듐을 합성하고 조성을 조절하여 다양한 파장을 얻을 수 있기 때문에 광전자기와 고온에서 작동되는 전력소자에 매우 매력적인 물질이다 [1-5]. 위와 같은 뛰어난 물성을 포함하는 소자를 구현하기 위해서는 고품질의 GaN 기판이 요구되지만 제작하기가 매우 어렵다. 많은 연구그룹에서 GaN 기판은 고가이기 때문에 사파이어, SiC 등 이종기판을 소자에 응용 및 기판 개발 중이다. 이종기판

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

Copyright ©2016 KIEEME. All rights reserved.
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

을 사용하면 열팽창계수 및 격자상수 차이로 인해 성장과 냉각공정에서 10^8 cm^{-2} 정도의 높은 쓰레딩 전위 밀도를 가진 GaN 기판이 만들어진다. 이런 문제점을 해결하기 위해 SAG (selective area growth) [6], ELOG (epitaxial lateral overgrowth) [7]와 MELO (maskless ELO) [8] 같은 성장 기술이 지속적으로 연구 개발 중에 있다.

GaN 기판은 Ammonothermal법 [9]이나 na-flux법 [10]과 같이 bulk 형태로 생산하거나 HVPE로 성장 후 LLO (laser lift-off) 방법 [11] 또는 self-separation법 [12]을 통해 얻어진다. Ammonothermal법은 과포화된 NH_3 를 이용하여 고온, 고압에서 쓰레딩 전위밀도가 낮은 고품질의 GaN 기판을 얻을 수 있지만 성장률이 매우 낮고 많은 비용이 요구된다. Na-flux법은 저압, 저온에서 Na 몰텐에서 solution 성장을 한다. 낮은 쓰레딩 전위밀도의 GaN 기판을 얻을 수 있지만 고품질의 seed GaN 기판이 필요하다. HVPE 성장법은 HCl과 Ga메탈을 반응시켜 GaCl을 형성하고 NH_3 와 반응하여 GaN을 성장하게 된다. 성장률이 다른 성장법보다 매우 빠르고, 불순물 함유량이 적고, 한 번의 공정에 여러 장의 GaN 기판을 제작할 수 있으며, 유지비용이 적어 양산형 장비로 적합하다.

본 연구에서는 MELO 방법을 통해 결함밀도를 제어하고 HVPE 성장법을 이용하여 GaN 기판을 제작하려고 하였다. 두꺼운 GaN막을 성장 시에 self-separation 현상을 분석하고 제작된 GaN 기판특성을 평가하였다.

2. 실험 방법

그림 1은 self-separation에 의한 FS-GaN 기판을 제작하는 과정을 순서대로 나타내었다. 그림 1(a)는 MELO 성장법을 이용하여 MOCVD 장비로 (0001) 사파이어 기판 위에 undoped-GaN을 성장하였다. TMGa (trimethyl gallium)와 NH_3 는 Ga과 N의 전구체로 사용되었고, 수소 분위기에서 진행되었다. 또한, silane (SiH_4)을 n-type 도펀트로 사용하였고 성장온도는 $1,050^\circ\text{C}$ 이다. MELO 성장법에 적용된 패턴 공정은 너비 $4 \mu\text{m}$ 와 간격 $14 \mu\text{m}$ 패턴을 이용하여 패턴링 공정을 적용하였고 ICP 에칭을 위해 $1 \mu\text{m}$ 이상의 Ni 층을 e-beam evaporator를 이용하여 증착하고 메탈마스크로 이용하였다. 패턴링 공정 후 측면 성장이 우선되는 조건을 적용하여 undoped-GaN층을 MOCVD 장비로 재성장하였다. 재성장온도는 $1,050 \sim 1,085^\circ\text{C}$, 압

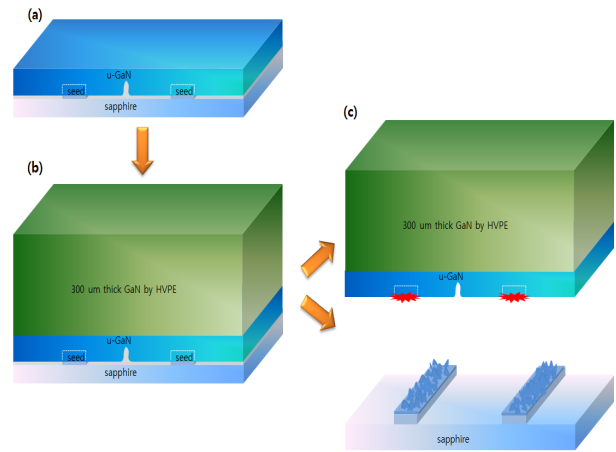


Fig. 1. Schematic diagrams of the fabrication of self-separation GaN on sapphire substrate.

력은 300 torr였으며 성장된 undoped-GaN의 두께는 약 $8 \mu\text{m}$ 이었다.

그림 1(b)는 약 $300 \mu\text{m}$ 의 두꺼운 GaN 막을 제작하기 위해서 수평형 HVPE 성장법으로 성장된 이미지를 보여주고 있다. HVPE 성장법의 성장온도는 $1,030^\circ\text{C}$, 질소 분위기에서 성장하였다. 그림 1(c)는 HVPE 장비로 성장 후 냉각공정에서 self-separation이 발생한 FS-GaN 기판과 사파이어 기판을 나타내는 그림이다.

Self-separation이 발생된 영역의 GaN 기판과 사파이어 기판의 형성을 관찰하기 위하여 FE-SEM (field emission scanning electron microscope)을 사용하였고, MELO 방법으로 성장한 후 성장된 표면에서의 결함밀도를 MCL (micro cathodluminescence)로 측정하였다. 또한 성장된 각각의 층과 영역별 응력분포를 확인하기 위해서 Raman 측정법(NRS 3100, Jasco, Japan)으로 관찰하였고, 광학적 특성을 확인하기 위해 상온 및 저온 PL (photoluminescence) 측정을 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2(a)는 MELO 방법을 이용하여 MOCVD 장비로 성장된 undoped-GaN 구조의 단면을 보여준다. Undoped-GaN은 패턴링공정과 에칭공정을 통해 seed 영역에서부터 측면 성장되었고, 에칭되어 노출된 사파이어 기판에서는 성장되지 않는 것을 확인할 수 있었다.

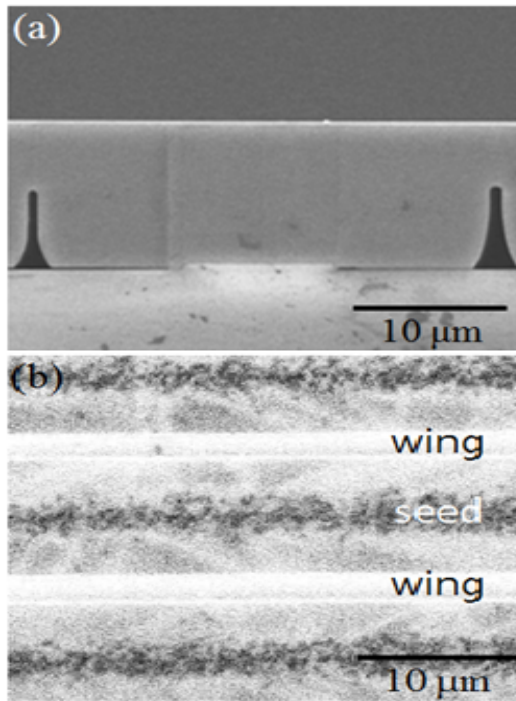


Fig. 2. (a) Cross-section FE-SEM image of the maskless ELOG u-GaN air-bridge structure by MOCVD. (b) MCL plan view image of the bottom surface of the maskless ELOG u-GaN.

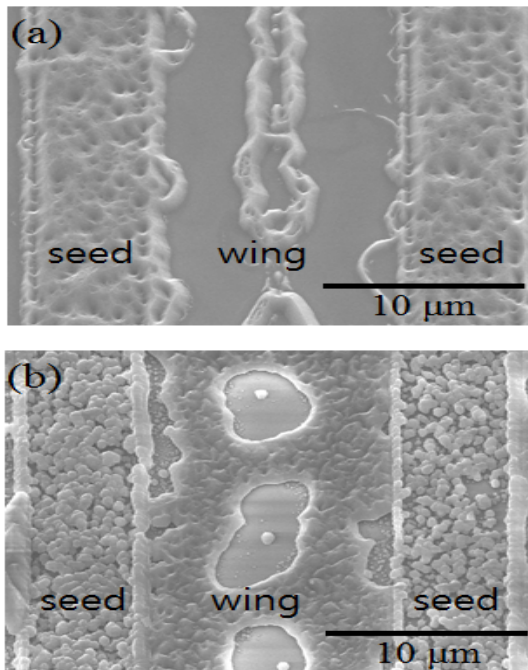


Fig. 3. FE-SEM image of (a) backface GaN and (b) top surface sapphire after self-separation respectively.

또한 양쪽 seed 영역에서 측면 성장 되어 뺏어 나온 wing 영역이 만나서 성장되는 coalescence boundary 영역에서 단차 없이 평평하게 성장되었다. Coalescence boundary 영역에서는 GaN막의 윗부분이 우선적으로 성장되어 다른 영역에서 비해 성장두께가 얇은 것을 확인하였다.

그림 2(b)에서는 성장된 MELO GaN 막의 CL을 측정 한 결과를 보여주고 있다. MCL 이미지에서 확연하게 seed 영역과 wing 영역이 구분되었다. Seed 영역의 검은색 점은 혼합된 쓰레딩 전위를 나타내고 전위 밀도는 $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 였다. Wing 영역의 전위밀도는 $7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ 로 측면 성장된 영역에서 결함 밀도가 현저히 감소된 것을 확인할 수 있다. 이는 seed 영역의 가장 자리에서 형성된 결함이 측면으로 전파되지 않았음을 의미하며 이후에 재성장되는 GaN막에는 매우 낮은 결함 밀도가 형성되었다. 앞서 제작된 MELO GaN template 위에 HVPE 장비를 이용하여 300 μm 두께 이상의 두꺼운 GaN막을 성장하였다.

그림 3은 HVPE 장비를 이용하여 두꺼운 GaN 막을 성장 후 냉각공정에서 self-separation 된 후 FS-GaN 기판의 후면과 사파이어 기판의 표면을 FE-SEM으로 측정하였다. 그림 3(a)는 분리된 후 FS-GaN의 후면으로 그림 2(b)와 같이 seed 영역과 wing 영역이 확연히 구분된 형태를 보여준다. 그림 3(a)와 (b) 이미지를 비교하면 seed 영역에서도 아래 부분인 MOCVD로 성장된 부분과 사파이어 기판과 가장 가까운 영역에서 분리가 일어났다.

선행 연구 결과에 의하면 GaN막이 사파이어에서 분리되는 것은 냉각공정 도중에 열팽창계수의 차이로 발생된 스트레스에 의해 분리된다고 보고되었다 [13]. 또 다른 선행 연구 결과에 따르면 self-separation은 GaN 막의 결함이 많은 영역에서 발생한다고 보고되었다 [12,14]. 본 연구에서는 seed 영역에 결함 밀도가 높은 것도 self-separation에 영향을 미쳤을 것으로 판단되지만 결정적인 영향은 두껍게 성장된 GaN막이 격자상수 차이와 열팽창계수 차이에 의한 잔류응력을 더 크게 발생시켜 냉각공정 중에 분리가 된 것으로 판단된다.

Raman은 GaN 막의 잔류응력 특성을 측정하기 위한 효과적인 장비로써 기판 분리 전후의 응력을 확인하기 위해 라만을 이용하여 기본 GaN template과 MELO GaN 위에 두꺼운 GaN막을 성장 후 잔류응력을 측정하였다.

그림 4는 위의 두 샘플의 라만 측정 결과를 보여주고 있다. MELO GaN template을 이용하여 재성장한 샘플과 MELO 패턴이 적용되지 않고 재성장된 두 샘플의 Raman 측정 결과를 보여주고 있다. MELO GaN template 위에 성장된 샘플의 경우 냉각공정 중 기판이 분리되어 FS-GaN 형태의 기판에서 seed 영역과 wing 영역을 나누어 측정하였다. 측정결과는 (a) wing 영역, (b) seed 영역, (c) 패턴이 없는 GaN template에서 각각의 E₂ (high) 피크는 566.33 cm⁻¹, 566.43 cm⁻¹, 566.53 cm⁻¹이었다. 일반적으로 E₂ (high) 피크의 위치는 잔류응력과 관련이 있는데 E₂ (high) 피크의 위치가 566.2 cm⁻¹일 때 잔류응력이 없다고 알려져 있다 [15]. 모두 압축 응력 상태로 나타났었고 압축 응력의 값은 다음 식을 이용하여 구하였다.

$$\Delta\omega = K\gamma\sigma_{xx} \quad (1)$$

스트레스 계수 K는 2.56 cm⁻¹/GPa로 알려져 있다 [16]. MELO GaN template을 이용한 경우에는 잔류응력이 0.05 ~ 0.09 GPa였고, 패턴이 없는 GaN template은 0.13 GPa로 응력이 다소 감소된 것을 확인할 수 있었으며 이는 사파이어 기판 분리에 따른 strain relaxation 효과로 볼 수 있다. 분리 전 냉각공정 중에는 두꺼운 GaN막과 사파이어 기판과의 유일한 연결부위인 seed 영역에 상당한 압축응력이 존재했을 것으로 판단되며 이 응력에 의해 self-separation 된 것으로 판단된다. 또한 wing 영역과 seed 영역의 측정 결과에서도 다소 차이가 보이는데 이는 결함밀도 차이에 의한 결과로 사료된다.

그림 5는 광학적 특성을 알아보기 위해서 self-separation된 FS-GaN을 PL로 측정한 결과이다. PL은 10 K와 300 K에서 측정하였고, 325 nm He-Cd 레이저를 사용하였다.

300 K에서 측정한 결과에서는 band to band transition과 관련이 있는 NBE (near band edge) 피크는 3.404 eV에서 관찰되었다. 선행연구 결과에 따르면 스트레스가 없는 GaN막의 PL 피크 위치는 3.4 eV 알려져 있다 [17]. 측정된 피크의 위치 변화는 FS-GaN 기판에 사파이어 기판 분리 후에도 약간의 압축응력이 존재함을 나타내며 앞서 측정된 라만 결과와 동일한 경향을 나타내고 있다. 그리고 상온 측정결과에서 NBE 피크의 솔더 피크가 일부 관찰되었는데 이 현상은 성장할 때 GaN 결정격자에 불순물이 일부 포함되었다는 것을 의미한다 [18].

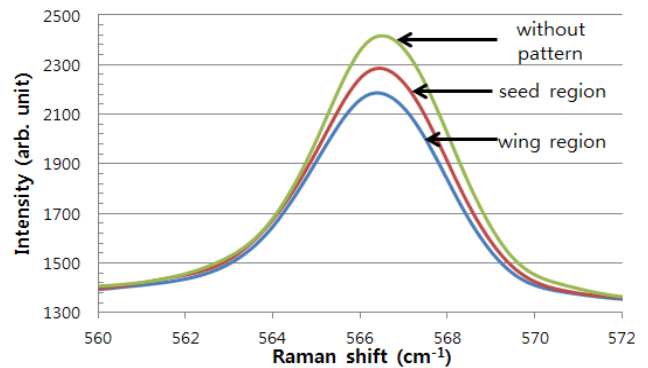


Fig. 4. Raman spectrum of the E₂ (high) phonon mode of self-separation GaN. (a) Wing region, (b) seed region, and (c) without pattern GaN.

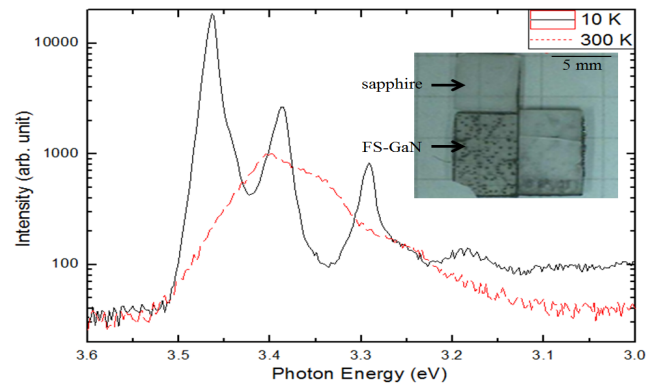


Fig. 5. Comparison of self-separation GaN from low and room temperature photo luminescence spectra, (a) 300 K and (b) 10 K.

10 K 저온에서 측정한 PL 결과는 도너 결합 엑시톤 (donor bound exciton, DBE), 도너 억셉터 쌍 전이 (donor acceptor pair, DAP) 피크가 관찰되었다. 일반적으로 3.27 eV에서 나타나는 도너 억셉터 쌍 전이 피크는 self-separation FS-GaN이 doping 없이 고품질로 성장되었음을 의미한다 [19].

4. 결 론

본 연구에서는 MELO 성장법을 통해 제작된 GaN template을 이용하여 수평형 HVPE 성장법을 통해 self-separation된 FS-GaN을 제작하였다. HVPE 성장 후 분리된 FS-GaN의 후면과 사파이어 전면의 형

태 관찰을 통해 seed 영역의 하단에 응력이 집중되어 냉각과정 중 분리되었음을 확인하였다. MCL 측정방법으로 MELO 방법으로 성장된 GaN 막의 결함밀도를 측정할 수 있었고, wing 영역에는 seed 영역보다 낮은 결함밀도가 관찰되었으며 이는 wing 영역에서 고품질의 GaN 막이 성장되었음을 나타낸다. Raman 측정에서는 모든 영역에서 압축응력상태를 확인하였으나 기판 분리 후 응력이 효과적으로 제거되었다. PL 측정법을 통해 고품질의 self-separation된 FS-GaN이 성장되었음을 확인하였다. 본 연구에서는 결함밀도가 낮으며 고품질의 FS-GaN 기판을 기존 방법인 LLO 방법 없이 제작이 가능함을 보여주고 있다.

감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원(No. 2015R1A6A1A03031833)과 한국세라믹기술원 정책연구사업의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] M. Balaji, A. Claudel, V. Fellmann, I. Gelard, E. Blanquet, R. Boichot, A. Pierret, B. A. 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*, **8**, 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] F. Reveret, Y. Andre, O. Gourmala, J. Leymarie, M. Mihailovic, D. Lagarde, E. Gil, D. Castelluci, and A. Trassoudaine, *J. Cryst. Growth*, **421**, 27 (2015). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2015.03.035>]
- [7] 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>]
- [8] D. J. Park, J. Y. Lee, H. K. Cho, C. H. Hong, and H. S. Cheong, *J. Korean Phys. Soc.*, **45**, 1253 (2004).
- [9] T. Sochacki, Z. Bryan, M. Amilusik, M. Bobea, M. Fijalkowski, I. Bryan, B. Lucznik, R. Collazo, J. L. Weyher, R. Kucharski, I. Grzegory, M. Bockowski, and Z. Sitar, *J. Cryst. Growth*, **394**, 55 (2014). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2014.02.020>]
- [10] M. Imanishi, K. Murakami, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, D. Matsuo, M. Mauyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Phys. Status Solidi C*, **10**, 400 (2013). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201200705>]
- [11] H. K. Son, J. H. Kim, M. J. Lee, T. Y. Lim, H. K. Oh, J. H. Kim, Y. J. Choi, H. Y. Lee, K. B. Shim, and J. H. Hwang, *J. Ceram. Process. Res.*, **15**, 57 (2014).
- [12] X. Li, J. Wu, N. Liu, T. Han, X. Kang, T. Yu, and G. Zhang, *Mater. Lett.*, **132**, 94 (2014). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.matlet.2014.06.068>]
- [13] B. Lucznik, B. Pastuszka, I. Grzegory, M. Bockowski, G. Kamler, J. Domagala, G. Nowak, P. Prystawko, S. Krukowski, and S. Porowski, *Phys. Status Solidi C*, **3**, 1453 (2006). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.200565126>]
- [14] A. D. Williams and T. D. Moustakas, *J. Cryst. Growth*, **300**, 37 (2007). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2006.10.224>]
- [15] T. Paskova, D. Hommel, P. P. Paskov, V. Darakchieva, B. Monemar, M. Bockowski, T. Suski, I. Grzegory, F. Tuomisto, K. Saarinen, N. Ashkenov, and M. Schubert, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 141909 (2006). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.2192149>]
- [16] D. G. Zhao, S. J. Xu, M. H. Xie, and S. Y. Tong, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 28 (2003).
- [17] A. A. Porporati, Y. Tanaka, A. Matsutani, W. Zhu, and G. Pezzotti, *J. Appl. Phys.*, **100**, 083515 (2006). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.2360152>]
- [18] A. P. Vajpeyi, S. J. Chua, S. Tripathy, and E. Fitzgerald, *Electrochem. Solid-state. Lett.*, **8**, G85 (2005). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1149/1.1861037>]
- [19] B. Monemar, H. Larsson, C. Hemmingsson, I. G. Ivanov, and D. Gogova, *J. Cryst. Growth*, **281**, 17 (2005). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2005.03.040>]