

선택적 LPE 방법에 의한 GaAs 기판 상의 InP 이종접합 박막의 성장

이병택 · 안주현 · 김동근 · 안병찬 · 남 신* · 조정익* · 박인식** · 장성주***

전남대학교 금속공학과
*전자통신연구소 물성분석실
**금성전선 광통신연구소
***동신대학교 물리학과

Growth of Heteroepitaxial InP/GaAs by Selective liquid phase epitaxy

Byung-Teak Lee, Ju-Heon An, Dong-Keun Kim, Byung-Chan Ahn, Sahn Nahm*,
Kyoung-Ik Cho*, In-Shik Park**, and Seong-Joo Jang***

Dept. of Metallurgical Engineering, Chonnam National University, Kwangju 500-757

*Materials Characterization Section, ETRI

**Fiber Optics and Comm. Research Laboratory, Gold Star Cable

***Dept. of Physics, Dongsin University, Naju 520-180

초 록 선택적 LPE 방법을 이용하여 (111)B GaAs 기판 상에 InP 연속 박막을 성장하고 그 특성을 평가하였다. 적정 LPE 성장조건으로 성장온도 660°C, 과냉도 5°C, 냉각속도 0.4°C/min였으며, 연구된 온도 범위에서 성장온도가 증가할수록 표면형상이 개선되었고 ELO의 넓이가 증가하였다. Seed 방향이 (112) 방향에서 110-160 μ m 정도의 최대 ELO 넓이가 얻어졌으며 60-80 μ m 정도의 마스크 간격에서 연속박막을 용이하게 성장할 수 있었다. LPE 성장초기에 기판 용해 현상이 발생하였으며 이에 따라 성장박막의 조성이 대략 In_{0.85}Ga_{0.15}As_{0.01}P_{0.99}으로 변화하고 InP/GaAs 계면 및 박막 표면형상이 거칠어졌으나 기판의 성장 부위가 제한됨에 따라 통상적인 LPE 박막에 비교하여 매우 개선된 표면형상을 얻을 수 있었다. 두개의 성장용액을 이용하여 1차 박막성장 후 다시 InP 박막을 성장하는 2단계 성장 방법을 사용하여 순수한 InP/GaAs 박막을 성장할 수 있었으며 단면 TEM 분석 결과 SLPE 성장박막으로 전파하는 활주전위는 산화막 마스크에 의해 효과적으로 차단됨을 알 수 있었다.

Abstract Heteroepitaxial InP/GaAs layers were grown using the selective liquid phase epitaxy (SLPE) technique. It was observed that the optimum LPE conditions were 660°C growth temperature, 5°C supercooling, and 0.4°C/min cooling rate. Maximum epitaxial layer overgrowth (ELO) of 110-160 μ m was obtained when the seed was aligned along (112) orientation. Initial melt-back of the substrate was observed but limited to the seed region so that flat In-Ga-As-P layers were grown throughout the GaAs substrates. The InP/GaAs heteroepitaxial structure could be obtained by growing an additional InP layer on top of the In-Ga-As-P layer.

1. 서 론

InP와 GaAs를 같은 기판 상에 성장시킴으로서 발달된 GaAs 전기소자와 장거리 광통신용으로 우수한 특성을 갖고 있는 InP 광소자를 집적하고자하는 연구는 GaAs와 Si를 집적하려는 노력에 비하여 두 재료가 비교적 비

슷한 특성을 갖기 때문에 보다 현실성 있는 대안으로써 여러 연구자에 의해 제안된 바 있다¹⁻³⁾. 특히 GaAs 기판 상에 InP를 성장하는 연구는 Si 기판 상에 InP 박막을 성장하는 연구의 기초가 되므로 더욱 많은 관심을 끌고 있다³⁾.

선택적 LPE(selective liquid phase epitaxy,

SLPE) 방법은 Fig. 1에 나타난 바와 같이 박막 성장에 사용할 기판 상에 마스크 패턴을 형성하여 기판의 핵생성 부분을 국부적으로 제한한 후 노출된 기판을 핵생성 seed로 작용시켜서 마스크 위에 박막의 횡방향 성장(epitaxial lateral overgrowth, ELO)을 유도하는 박막성장 방법으로 ELO 폭을 마스크 간격보다 넓게 할 수 있는 적정 성장조건을 확립하면 연속박막을 얻을 수 있다. 이 방법은 LPE 자체가 평형성장법이어서 고품질의 박막을 성장하는데 적당할 뿐만 아니라 박막 성장시 핵생성 자리(site)를 제한하고 따라서 성장 중의 박막이 측면으로부터의 응력을 받지 않으므로 적절한 조건에서 성장되었을 때 기판보다 저전위밀도를 갖는 고품위 박막이 얻어질 수 있으며 박막 내에 존재하는 잔류응력을 감소시킬 수 있다고 알려져 있다⁴⁻⁷⁾.

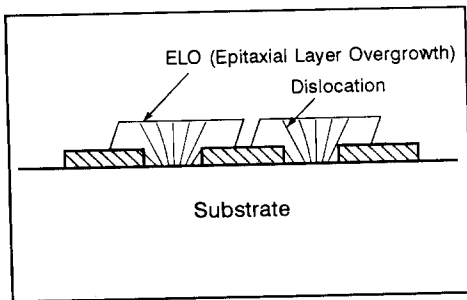


Fig. 1. Schematic diagram showing the epitaxial layer overgrowth process.

SLPE 방법은 특히 이중접합구조의 LPE 성장 초기에 심각하게 발생하는 기판 용해(melt-back) 현상의 한 해결 방안으로 제안되고 있다⁵⁾. 성장용액이 기판 조성의 재료에 이미 포화되어 있어 기판/용액 접촉 시 즉시 성장이 일어나는 동종 LPE 성장과는 달리 이중구조의 LPE 성장에 있어서는 성장용액이 기판 조성이 아닌 성장박막 조성에 포화되어 있으므로 거의 모든 경우에 있어서 기판/용액 접촉 시 기판의 상당부분이 용액에 용해되어 추후 성장되는 박막의 표면형상을 저해하는 것은 물론 기판의 용액 용해도가 매우 높은 GaAs/Si과 같은 경우 기판에 구멍이 생기는 현상까지 발생한다^{8, 9)}. SLPE에 있어서는 기판/용액의 접촉 부위가 seed 부분에 한정되므로 기판 용해 현상에 국부적으로 제한되어 이

어 성장하는 박막의 특성에 미치는 영향을 최소화할 수 있어서 박막의 특성을 개선할 수 있다고 제안되었다⁵⁾.

SLPE 방법을 실제 소자의 제작에 적용하기 위해서는 전체 시편을 덮는 연속박막의 성장이 필수적이나 지금까지 SLPE에 대한 연구는 주로 단일 seed에서 성장되는 ELO의 특성을 연구하는데 그치고 있으며 재료도 GaAs/Si, Si/Si 등의 연구에 국한되어 왔다⁴⁻⁷⁾.

본 연구에서는 SLPE 방법을 이용하여 GaAs 기판 상에 InP(InP/GaAs)박막의 성장시 적정 성장조건을 확립하고 성장된 박막의 특성을 평가하였다. 특히 seed 방향, supercooling, 성장온도 등의 조건이 ELO 폭에 미치는 영향을 조사하여 이로부터 확립된 적정 ELO 조건을 사용하여 InP 연속 박막을 얻었으며 이중접합구조의 성장에 따른 기판의 용해문제와 이를 해결하기 위한 방안을 논의하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용된 기판은 상용의 (111)B GaAs 기판(n-type, carrier conc.: $5.3-5.7 \times 10^{17}/\text{cm}^3$)이었으며 LPE 박막은 자체 제작한 sliding boat 방식의 수평형 장치를 사용하여 먼저 포화용 InP 기판에 In 용액을 접촉하여 InP를 충분히 포화시킨 후 GaAs 기판을 접촉시켜 박막을 성장하였다. 성장조건을 특별히 언급되지 않은 경우 성장온도 및 성장시간은 각각 660°C 와 30분이었고 기판의 초기 용해를 다소간 억제하기 위해 실제 용액/기판 접촉온도를 In 용액을 InP에 포화시키는 온도보다 낮게 하였다(초기 과냉). 기판 전처리, 성장온도 프로그램 등 보다 상세한 성장공정은 이미 발표된 바와 같다¹⁰⁾. 산화막 마스크 패턴은 통상적인 광식각방법을 사용하여 제작하였으며 Fig. 2는 제작된 산화막 마스크의 평면사진을 보여주고 있다. 성장된 박막의 특성을 Nomarski 간섭 광학현미경(NDIC), 주사전자현미경(SEM), 투과전자현미경(TEM), photoluminescence(PL) 등의 방법으로 평가하였다.

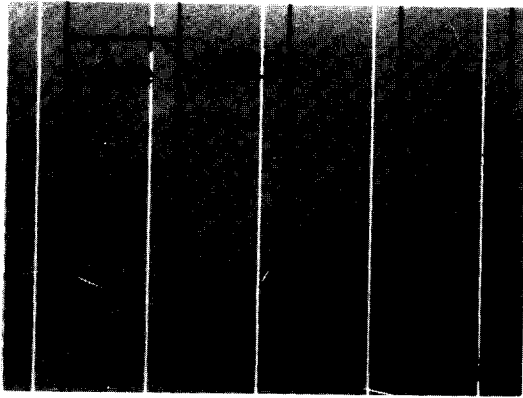


Fig. 2. Nomarski micrograph of the SiO₂ mask pattern used in this study.

3. 실험결과 및 고찰

Fig. 3은 성장온도에 따른 ELO의 폭 변화를 나타낸 것으로서 성장온도가 증가할수록 ELO의 넓이가 증가하고 있다. Fig. 4a와 4b는 각각 630°C 및 660°C의 성장온도에서 (111) B GaAs 기판 상에 성장된 InP 박막 표면의 NDIC 사진으로 두 성장조건에서 공히 flat하여 전체적으로 거울면이 얻어졌으나 630°C 성장온도에서는 InP 성장면에 In melt droplet이 다수 존재하며 표면형상 또한 660°C에서 성장된 박막에 비해 거칠음을 알 수 있다. 이는 이미 발표된 GaAs/(100) GaAs ELO의 연구 결과와⁷⁾ 일치하며 낮은 성장온도에서는 부분적으로 screw dislocation이 존재하여 이

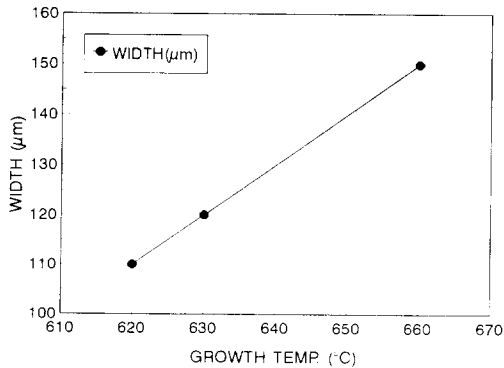


Fig. 3. Variation of InP ELO width as a function of growth temperature.

로 인한 표면 step이 성장 시 핵생성 자리로

작용하므로 성장 기관에서 수직방향으로의 성장이 용이하게 발생하여 성장표면 형상이 열악해짐과 동시에 횡방향으로의 성장을 제한하는 반면 높은 성장온도에서는 seed 내에 존재하는 atomic step만이 성장 step으로 작용하여 전체적으로 균일한 성장이 발생하므로 더 큰 ELO 폭이 얻어진다고 제안된 바 있다⁷⁾.

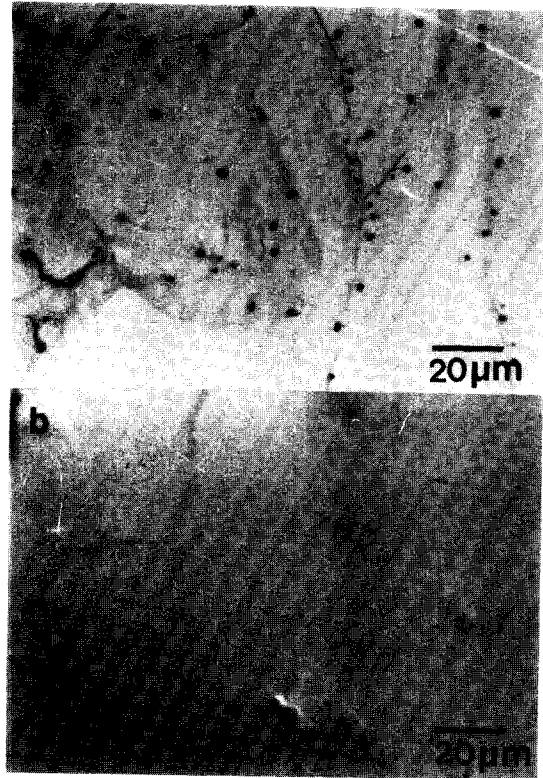


Fig. 4. Surface morphology of InP ELO layers on (111)B GaAs grown at (a) 630°C and (b) 660°C

Fig. 5는 (111)B GaAs 기판 상에 InP 박막을 성장할 때 초기 과냉도에 따른 표면형상의 변화를 나타낸 것으로 과냉도가 작을수록 표면형상은 현저히 개선됨을 알 수 있다. 이러한 현상은 과냉도가 큰 경우에 In 용액 내에 InP 과포화와 초기 성장속도가 크게 되므로 핵생성 seed 주위에 생성되는 InP 박막이 불균일하게 되기 때문으로 사료된다.

Fig. 6은 (111)B GaAs 기판 상의 seed 방향에 따른 ELO 두께 및 폭의 변화를 나타낸 것으로서 [112]방향에서는 ELO 폭이 110-160μm로서 [110] 방향에 비해 매우 크게 나

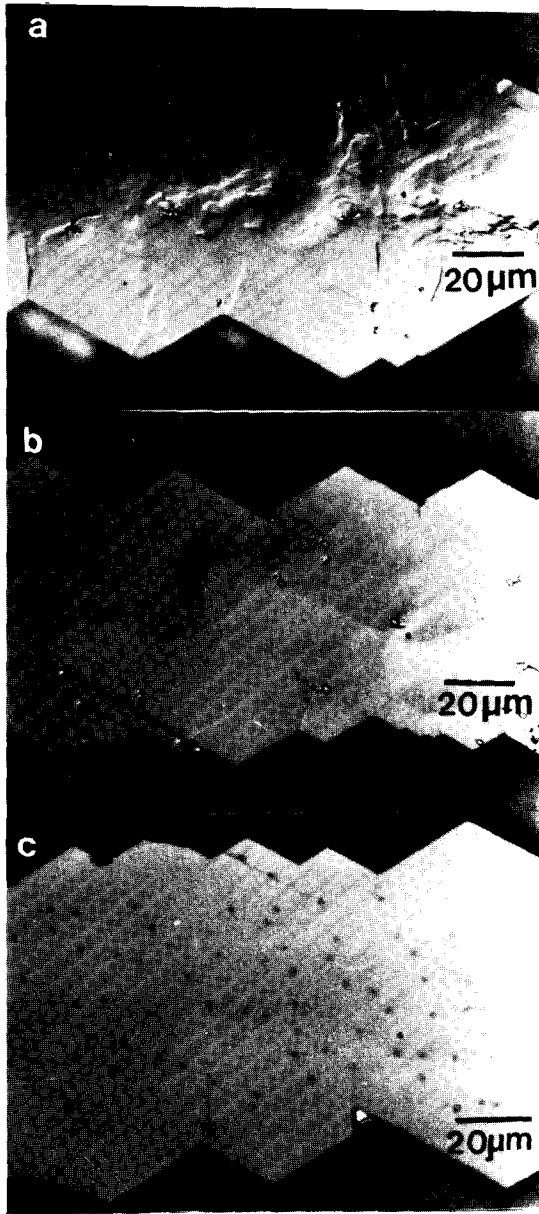


Fig. 5. Surface morphology of InP ELO layers on (111)B GaAs grown with initial supercoolings of (a) 19°C, (b) 15°C and (c) 6°C.

타난 반면 성장두께는 [110] 방향에서 [112] 방향에 비해 다소 증가함을 알 수 있는데 이는 이미 발표된 GaAs/(111)B GaAs 및 Si/(111) Si 구조의 SLPE ELO 특성과 유사한 결과이다^{4, 11)}. 이러한 경향은 Fig. 7에 나타난 바와 같이 [110] seed 방향의 경우 (Fig. 7a 및 7c) InP 성장층 양쪽 sidewall에 안정된 (111) facet이 형성됨에 따라 평행한 stripe

형태로 ELO의 횡방향 성장이 멈추게 되는데 반해서 [112] seed의 경우 (Fig. 7b) 결정방위 관계 상 InP 성장 측면이 zig-zag형(111) facet들로 구성되게 되므로 이들 ELO 측면 step이 핵생성 자리로 작용하기 때문으로 사료된다.

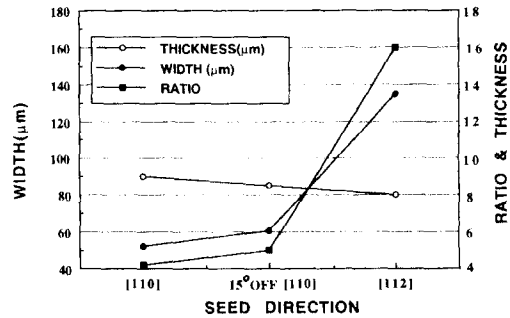


Fig. 6. Variation of InP ELO width and thickness as a function of the seed direction. Ratio is lateral growth/vertical growth.

Fig. 8a는 seed 방향 [112], seed 간격 60 μm에서 성장한 InP/GaAs 시편의 표면 광학현미경 사진으로 전체 기판을 통해 미려한 연속 박막이 얻어졌음을 알 수 있다. 박막표면 상에 약간의 거칠기가 관찰되며 이는 Fig. 8b의 단면사진에 화살표로 나타낸 바와 같이 seed 부위의 기판 초기 용해에 기인함을 알 수 있다. 이 결과를 통상적인 LPE 방법으로 성장된 경우(NLPE, Fig. 9)와 비교하여 보면 NLPE 성장의 경우 성장박막의 표면이 매우 거칠고 (Fig. 9a) 성장초기에 발생하는 기판 용해가 전체 시편에 걸쳐 진행하여 박막/기판 계면이 매우 거칠어진 (Fig. 9b) 반면에 SLPE 성장의 경우 기판 용해가 seed 부위로 제한되어 이어 성장하는 박막에 미치는 영향이 감소하기 때문에 박막의 표면형상 및 이종구조 계면의 거칠기가 현저하게 개선되었음을 알 수 있다.

Fig. 10은 SLPE 시편의 단면 TEM 관찰 결과를 보여주며 예상되었던 대로 이종접합 계면에서 형성된 활주전위가 산화막 마스크에 의해 효과적으로 차단되어 성장박막으로 전파가 억제되는데 (화살표) 반해 seed에서는 대부분의 전위들이 성장박막으로 전파됨을 알 수 있다 (Fig. 10a-10c). 한편 좌측 상단 Fig.

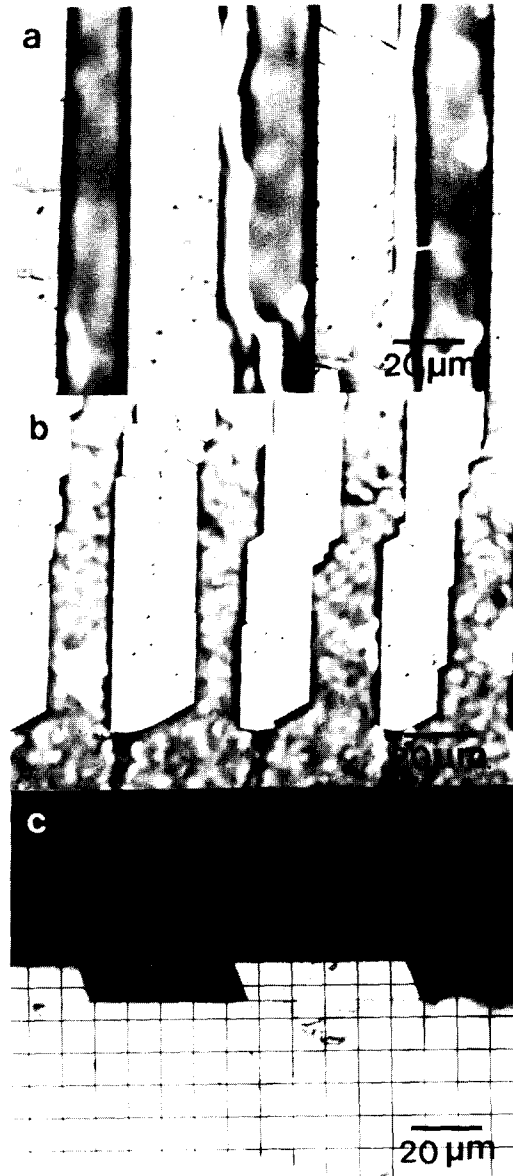


Fig. 7. Micrographs of InP ELO surfaces grown on (111) GaAs, (a) with the [110] seed and (b) with the seed 15° off from [110]. Fig. (c) shows the cross-section of (a).

10d에 대략적으로 나타낸 바와 같이 GaAs 기판의 용해에 의해 InP와 GaAs의 계면이 산화막 마스크 하부로 깊숙히 들어간 위치에서 형성됨에 따라 계면이 마스크 끝단에서 관찰되지 않고 있으며 성장용액의 조성 변화에 따라 박막 부위에 따른 TEM X-선 미세 성분 분석 (EDXS) 결과 (Fig. 10e, 10f) 박막의 표면까지 상당량의 Ga와 As가 측정되고 있어

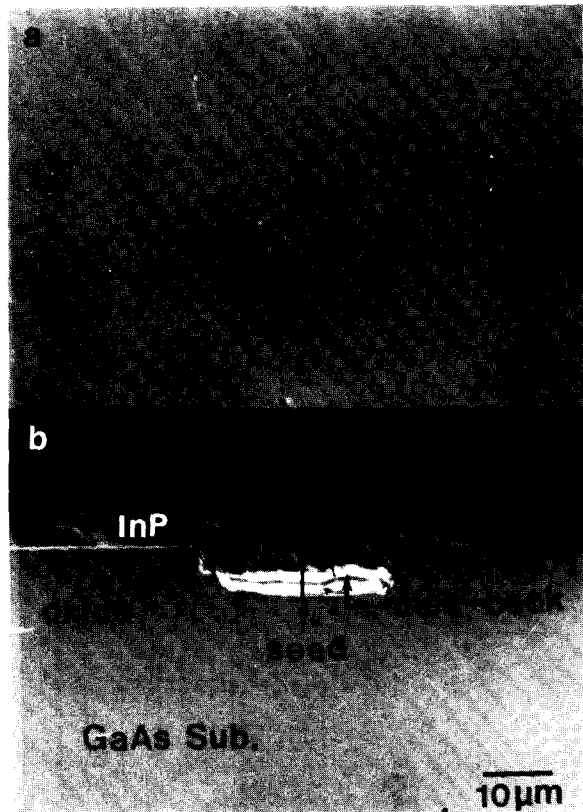


Fig. 8. Nomarski micrographs of (a) the surface and (b) the cross-section of a continuous SLPE InP film on (111)B GaAs.

서 실제 성장된 박막은 In-Ga-As-P의 조성임을 알 수 있다.

Fig. 11은 seed 방향을 [112], 간격을 80μm 정도로 조정하여 얻어진 InP 연속박막의 상온 PL(He-Ne laser) 결과로 성장 박막의 상온 발광파장이 시편 부위에 따라 834-865nm로 In-Ga-As-P의 조성임을 다시 확인할 수 있으며 위치에 따라 발광파장이 변하는 것도 기관 용해에 따른 박막조성의 불균일 때문으로 사료된다. 한편 XRD을 이용한 분석 결과 (Fig. 12) 성장박막의 격자상수는 0.580nm 정도로 측정되었으며 따라서 $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$ 에서 조성-밴드갭 에너지-격자상수 관계식을^(12, 13) 이용하여 계산한 결과 성장박막의 표면조성은 발광파장과 격자상수로부터 대략 $In_{0.85}Ga_{0.15}As_{0.01}P_{0.99}$ 이었다.

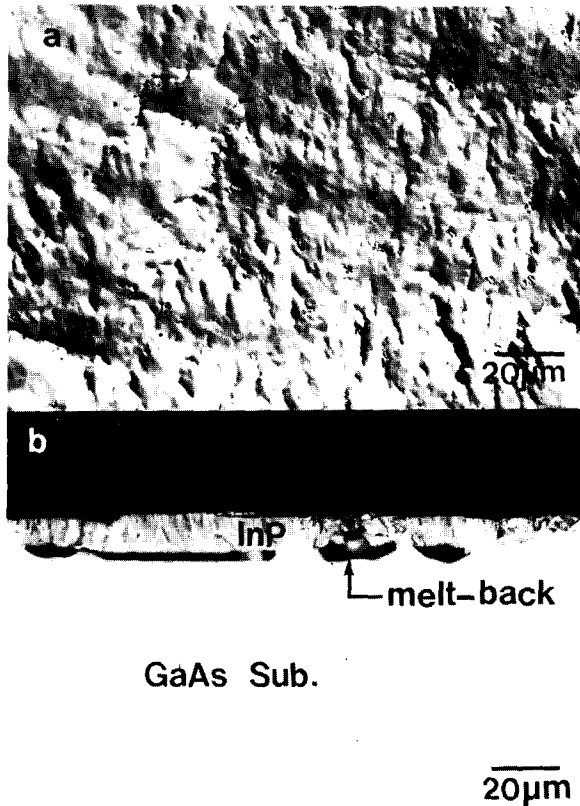


Fig. 9. Nomarski micrographs of (a) the surface and (b) the cross-section of the NLPE InP layer on (111)B GaAs.

기판 용해에 의해 In-Ga-As-P가 성장되는 문제를 해소하기 위하여 GaAs 박막을 InP 기판 상에 LPE 방법으로 성장할 때 Se 성장용액에 첨가하여 기판의 초기 용해를 방지할 수 있었다는 보고에¹⁴⁾ 따라 In 용액에 Se를 첨가하여 실험하여 보았으나 InP/GaAs계 성장의 경우 큰 변화가 관찰되지 않았다. 따라서 본 연구에서는 두개의 In 성장용액을 사용, 첫번째 용액으로 5분정도 성장하여 일차 In-Ga-As-P 박막을 성장한 후 기판을 움직여 두번째 용액으로 나머지 InP 층을 성장하는 2단성장을 시도하였다. Fig. 13은 상기 박막의 상온 PL 특성 및 SEM X-선 표면성분 분석 결과로 InP의 PL 발광위치인 1.35eV 정도에서 피크가 관측되었으며 표면에서 Ga이나 As가 관찰되지 않는 것으로 보아 2단 성장의 결과 InP층이 성장되었음을 알 수 있다.

4. 요약

선택적 LPE 방법을 이용하여 장파장 광통신 재료로서 많은 관심이 집중되고 있는 InP 연속 박막을 (111)B GaAs 기판 상에 성장할 수 있는 적정 조건을 확립하고 성장박막의 특성을 평가하여 다음의 결론을 얻었다.

1. 적정 LPE 성장조건은 성장온도 660°C, 과냉도 5°C, 냉각속도 0.4°C/min. 였으며, 연구된 온도 범위에서 성장온도가 증가할수록 표면형상이 개선되었고 ELO의 넓이가 증가하였으며, 초기 과냉도와 냉각속도의 변화는 큰 영향을 미치지 않았다. 또한 과냉도가 작아짐에 따라 성장면의 표면형상이 현저히 개선되었다.

2. InP 성장박막의 ELO 폭은 seed 방향에 크게 의존하였으며 [112] seed에서 110-160 μm로 최대 넓이가 얻어졌다.

3. LPE 성장초기에 기판 용해가 발생하여 박막 표면형상이 거칠어졌으나 기판의 성장부위가 제한됨에 따라 통상적인 LPE 박막에 비교하여 매우 개선된 표면형상을 얻을 수 있었다.

4. PL, XRD 분석 결과 성장박막 표면의 발광파장은 박막의 위치에 따라 대략 834-865nm 정도였으며 격자상수는 InP와 거의 일치하는 0.580nm 정도였다. 이는 대략 $In_{0.85}Ga_{0.15}As_{0.01}P_{0.99}$ 의 박막조성에 해당된다.

5. 두개의 성장용액을 사용하여 1차 In-Ga-As-P 박막 성장 후 다시 InP 박막을 성장하는 2단성장에 의해 최종 InP 박막을 성장할 수 있었다.

6. TEM 관찰결과 SLPE 성장박막으로 전파하는 활주전위는 산화막 마스크에 의해 효과적으로 차단됨을 알 수 있었다.

5. 후 기

본 연구는 서울대학교 신소재 결정성장 및 박막가공 센터를 통한 한국과학재단의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

6. 참고 문헌

1. M. K. Lee, D. S. Wu and H. H. Tung, J. Appl. Phys. 65, 3209 (1987).
2. S. N. G. Chu, W. T. Tsang, T. H. Chiu and

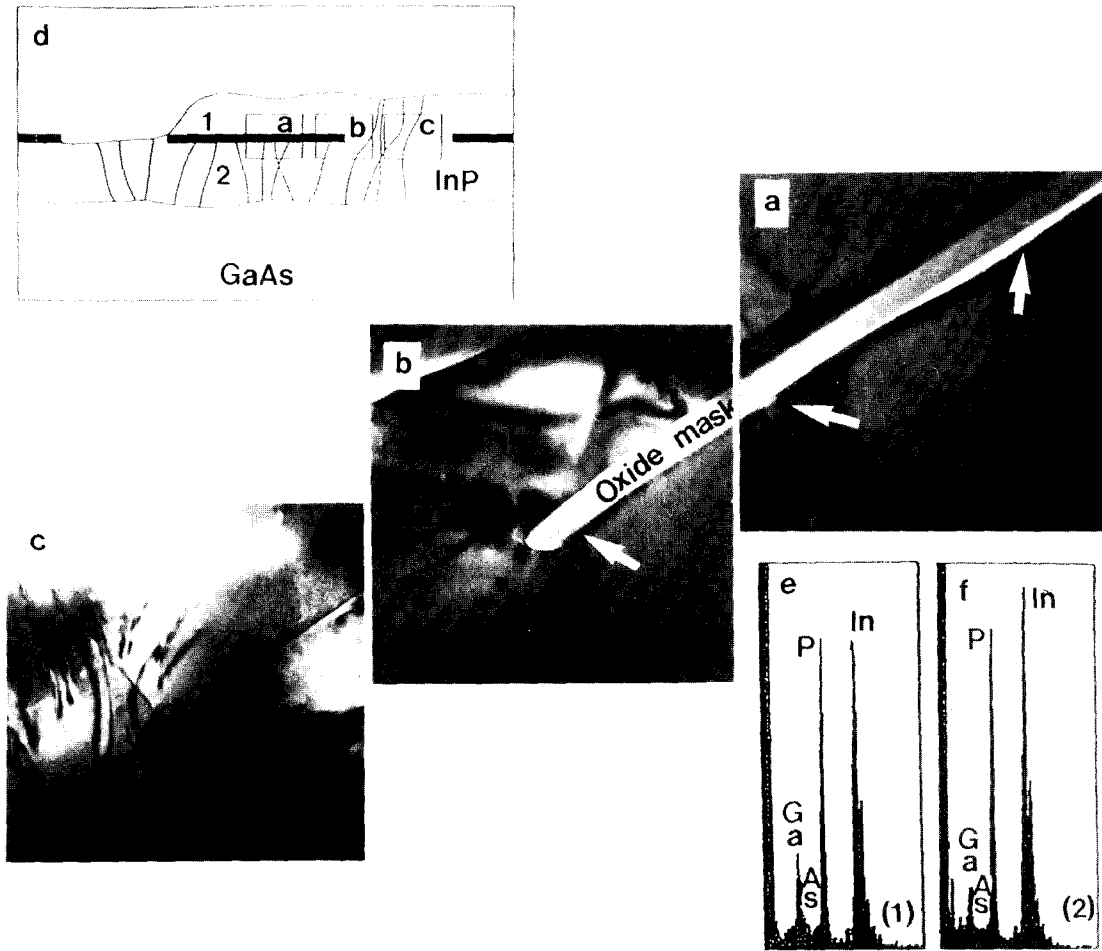


Fig. 10. Cross-sectional TEM micrographs and EDXS spectra of the In-Ga-As-P/GaAs film. Fig. (d) indicates positions within the TEM sample where the micrographs and the spectra were taken.

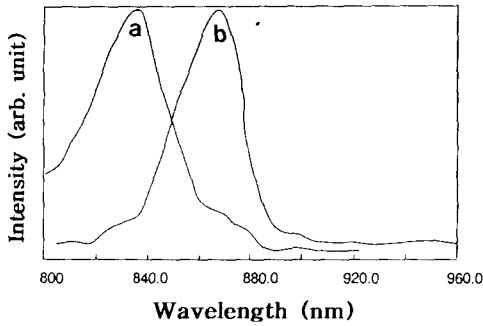


Fig. 11. PL spectra of In-Ga-As-P/GaAs. Fig. (a) and (b) denotes PL spectra from different positions on the specimen, which shows different PL wavelengths.

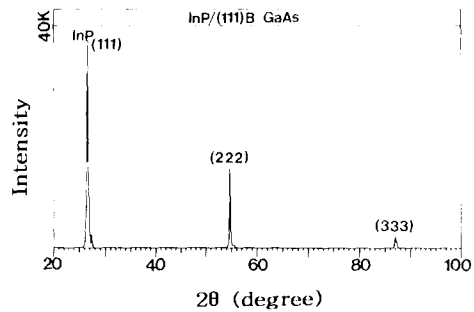


Fig. 12. XRD curve of the In-Ga-As-P/GaAs layer.

(1989).

3. P. Demeester, A. Ackaert, G. Coudenys, I. Moerman, L. Buydens, I. Pollentier and P.

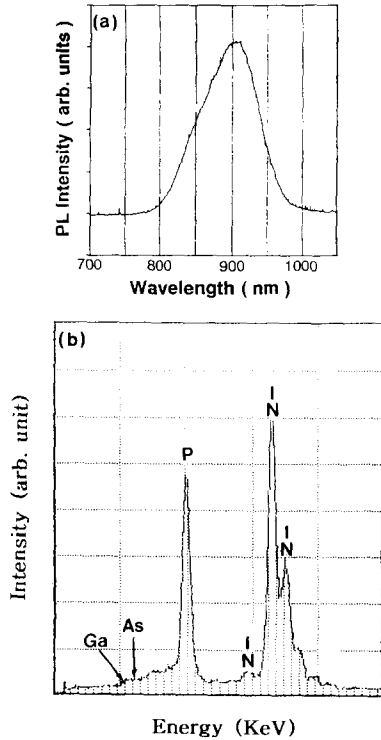


Fig. 13. (a) Room temperature PL and (b) surface EDX spectrum of the two-step grown InP/GaAs layer.

Van Daele, Prog Crystal Growth and Charact. 22, 53 (1991)

4. R. Bergmann, E. Bauser and J. H. Werner, Appl. Phys. Lett. 57, 351 (1990).
5. Y. Suzuki and T. Nishinaga, Jpn. J. Appl. Phys. 28, 440 (1989).
6. S. R. Collins and A. M. Barrett, Technical Report, Astropower, Inc., Delaware, USA
7. S. Zhang, T. Nishinaga, J. Cryst. Growth 99, 292 (1990).
8. J. P. Van der Ziel, R. A. Logan and N. Chand, J. Appl. Phys. 64, 3201 (1988).
9. S. Sakai, R. J. Matyi and H. Shichijo, J. Appl. Phys. 63, 1075 (1988).
10. 정이선, 안주현, 장일호, 이병택, 이형종, 장성주, 새물리 31, 436 (1991).
11. T. Nishinaga, T. Nakano and S. Zhang, Jpn. J. Appl. Phys. 27, L964 (1988).
12. R. L. Moon, G. A. Antypas and L. W. James, J. Elec. Mat. 3, 635(1974).
13. I. Ladany and F. Z. Hawrylo, J. Cryst. Growth 54, 69(1981).
14. D. K. Kim, H. J. Lee and B.-T. Lee, Proc. Mat. Res. Soc. Symp. Pro., Spring vol. 340 (1994), Edited by C. W. Tu, L. A. Kolodziejski and V. R. Mccrery.