

## $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$ 박막의 광학적 특성

정상조, 차옥환, 서은경, 김영실\*, 신현길\*\*, 조금재\*\*, 남승재\*\*

전북대학교 반도체과학기술학과/반도체물성연구소, 전주, 561-756

\*군산대학교 물리학과, 군산, 573-701

\*\* (주)한백 부설연구소, 대전, 306-230

(1999년 8월 5일 접수)

## Optical properties of the $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$ thin film

S.J. Chung, O.H. Cha, E.-K. Suh, Y.S. Kim\*, H.K. Shin\*\*, G.J. Jo\*\* and S.-J. Nam\*\*

*Semiconductor Physics Research Center & Department of Semiconductor Science and Technology, Conbuk National University, Chonju 561-756, Korea*

*\*Department of Physics, Kunsan National University, Kunsan 573-701, Korea*

*\*\*Hanvac corporation R&D center, Taejon 306-230, Korea*

(Received August 5, 1999)

**요 약** MOCVD로 성장된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막의 광학적 특성을 이해하기 위하여 실온에서 광발광(PL), 광전류(PC), 광단속에 의한 광전도도(PPC)를 측정하였다. PL과 PC로 결정된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막의 광학적 에너지 간격은 3.70 eV 이었다. PC 측정 시 빛을 시료의 위쪽에서 조사시켰을 때에는 3.70, 3.40 eV의 peak와 2.2 eV 근방에서 broad한 peak가 관측되었다. 그러나 기판 쪽에서 빛을 조사시켰을 때의 PC 스펙트럼은 2.2 eV 근방에서 broad한 peak와 3.43 eV peak 만을 볼 수 있었다. PPC 실험에서 관측된 photocurrent quenching과 비정상적인 PPC 현상은 GaN층의 영향으로 GaN 띠간격내에 형성된 전위나 vacancy 등의 결정결함 준위내에 전자들이 포획되고 오랫동안 포획되어 있다가 다시 방전되는 현상으로 보인다.

**Abstract** In order to investigate the optical properties of the  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  thin film grown by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) method, the photoluminescence (PL), photocurrent (PC) and persistent photoconductivity (PPC) measurements were carried out at room temperature. The band gap of the  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  was determined to 3.70 eV by the PL and PC measurements. The PC measurement on the light illumination from the top of the  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  thin film provides peaks at 3.70, 3.43, and around 2.2 eV. The PC spectrum by the illumination passing through from the substrate of the sample can be shown at 3.43 eV together with a broad tail band from the GaN band edge to around 2.23 eV. The photocurrent quenching and anomalous PPC decay observed in PPC measurements indicate that metastable electron states are formed in the band gap of GaN layer to trap electrons which can be tunneled the potential barrier for long recovery time.

### 1. 서 론

GaN를 기초로 한 질화물 반도체는 우수한 광학적 특성 때문에 발광다이오드(LED), 레이저 다이오드(LD), 자외선 감지 센서 등의 응용에 많은 연구가 이루어지고 있다[1]. 그 중에서 3원 합금 질화물 반도체인  $Al_xGa_{1-x}N$ 는 에너지 간격이 3.39 eV( $x = 0$ )에서 6.19 eV( $x = 1$ )까지 변화하기 때문에 visible-blind UV 탐지기와 같은 광전소자 응용에 큰 관심을 끌고 있다[2]. 또한, 열적 안정성과 radiation hardness 때문에 내구성이 좋은 환경감시용 탐지기, 우주

통신이나 태양의 UV monitoring system은 물론, GaN와 비교해 볼 때 전도대 및 굴절률의 차가 크기 때문에 발광소자의 cladding 층으로 이용하는 등 이 물질에 대한 응용범위가 넓어져가고 있다[3]. 따라서 이 같은 물질의 좋은 특성을 소자에 응용하려면 우선 먼저 이 물질에 대한 물리적인 특성을 이해하는 것이 중요하다. 많은 노력에도 불구하고[4, 5, 9] 띠 간격 내에 존재하는 깊은 준위들과 관련된 물리적 성질들은 아직까지도 명확히 밝혀져 있지 않고 있다.

최근 Dang 등[4]은  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$ 에 대하여 광전류

실험을 통해 결함준위들에 대하여 연구하였으며, 이를 이중 접합구조에서 PPC(persistent photoconductivity) 현상과 관련하여 설명하고 있다. 또한 Steude 등[5]은 PL(photoluminescence), CAS(Calorimetric absorption), CRS(Calorimetric reflexion), CTS(Calorimetric transmission) 실험 등을 통해 Al(x) 성분부에 따른 자유 엑시톤(exciton)의 위치를 결정하여 보고하였다.

따라서 본 연구에서는 PL, 광전류, 광단속에 의한 광전도도(persistent photoconductivity: PPC) 실험을 이용하여  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막의 실온 특성을 조사하였다. PL과 광전류 실험에서  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막의 띠간격은 3.70 eV로 결정되었고, 흔히 GaN에서 나타나는 yellow band(YB) luminescence와 관련된 peak들이 관측되었다. 또한 AlGaN 층의 두께가 얇은 시료에 대한 PPC 실험에서는 이미 보고된 n-형 GaN[6], p-형 GaN[7, 8],  $Al_xGa_{1-x}N$ [9] 등에서 나타나는 것과는 아주 다른 특이한 현상이 나타났다. 즉 시료에 빛을 계속 조사시키는데도 불구하고 광전류가 감소하는 photocurrent quenching 현상과 빛을 제거했을 때 광전류가 붕괴되는 과정이 지수함수적으로 감소되지 않는 비정상적인 PPC 현상이 관측되었다. 이러한 PPC 현상은 우리의 두께가 얇은(1.4~1.7  $\mu m$  정도) undoped n-type GaN, undoped InGaN에서도 관측되었다. 따라서 본 논문에서는 PL, PC를 이용하여  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막의 광학적 띠 간격을 결정하고 띠 간격 내에 존재하는 결함준위와 PPC 사이의 관계 등을 고려하여 PPC 실험에서 관측된 photocurrent quenching과 비정상적인 현상들에 대하여 논하고자 한다.

## 2. 실험

본 연구에서 사용된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막은 MOCVD 방법을 이용하여 c-plane  $Al_2O_3$  기판 위에 성장한 것이다. 박막 성장 전에 1150°C 수소분위기 속에서 열적으로 표면 클리닝을 실시하고, 540°C 온도에서 30 nm 두께로 GaN 완충층을 성장하고, 1100°C 온도에서 2  $\mu m$ 의 undoped GaN 에피층을 성장시킨 후 연속해서 그 위에 undoped  $Al_xGa_{1-x}N$  박막 층을 1100°C에서 0.2  $\mu m$ 의 두께로 성장하였다.

성장된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막의 실온 특성을 조사하기 위해 PL, PC, PPC 등을 측정하였다. PC를 측정하기 위한 시료의 전극은 자유전자와 자유공공의 재결합으로 인한 광전류의 감소현상을 줄이기 위해 빛의 이용효율이 높고 표면에 평행한 전기장을 만들도록 빛을 쬐이는 시료의 앞면에 두 개의 전극을 부착시키는 전면2전극 방법으로 Al/Ti를 사용하여 제작하였다. 전극부착이 완료된 측정시료의

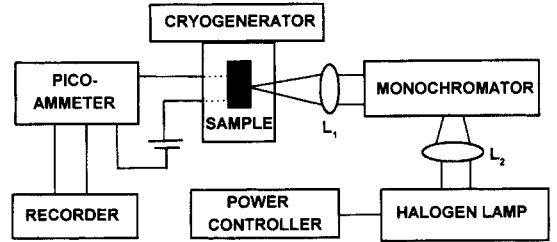


Fig. 1. Experimental apparatus for the photocurrent measurements.

I-V 특성을 조사한 결과, 선형적으로 변화되었기 때문에 ohmic contact은 아주 좋았다는 것을 확인하였다. Fig. 1은 광전류 측정장치를 보여주는 것으로, 광원으로는 tungsten halogen lamp(120 V, 1000 W)와 일본 Shimadza AQV50 spectrometer를 사용하였고 각 파장에서 광원의 세기는 110 V, 3 kW 가변변압기(slidax)로 조절하여 일정한 값으로 규격화하였다. 시료에 인가된 bias전압은 건전지를 조합하여 1.5~3 volt 사이에서 적절한 값을 찾아 사용하였다. 광전류는 Keithly 480 picoammeter, Fluke 8842A multimeter, 또는 일본 TOA PM-18RDC picoammeter를 사용하여 측정하였으며, 전류계의 출력은 X-Y recorder(Dupont 990 thermal analyzer용)에 연결하여 기록하였다. 파장변화는 장파장에서 단파장 쪽으로 변화시켰으며 이때 파장영역은 800~250 nm이었다.

또한 PPC 측정은 1000 W tungsten halogen lamp와 Shimadza AQV50 spectrometer를 사용하여 3.0~3.7 eV 사이의 광 에너지를 시료에 조사하였다. 측정시간은 광 조사에 의한 rising curve나 광 차단에 의한 curve가 안정된 값에 이를 때까지 충분한 시간간격을 두고 측정하였다. 측정 전에 실질적인 암전류를 찾기 위해 bias 전압을 인가한 상태에서 24시간 이상 dark 상태로 유지하여 안정시켰다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 성장된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막에 대하여 실온에서 측정된 PL 스펙트럼이다. 주 피크는 3.70 eV이고 낮은 에너지 쪽에서 약한 YB luminescence가 나타남을 볼 수 있다.  $Al_xGa_{1-x}N$  박막의 띠간격은 보통  $E_g(x) = xE_{g,AlN} + (1-x)E_{g,GaN} - bx(1-x)$ 에 의해 결정된다. 여기에서 b는 concentration-independent bowing parameter이다. Wurtzite GaN와 AlN은 직접 띠간격으로써 각각 3.4 eV[10]와 6.2 eV[11] 값을 갖는다. 따라서  $E_{g,AlN}$ 는 6.2 eV,  $E_{g,GaN}$ 는 3.4 eV, b는 1[12], PL실험에서 얻어진 값  $E_g(x)$ 는 3.70 eV

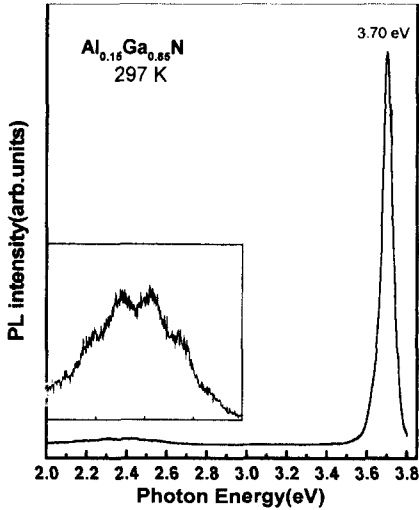


Fig. 2. Photoluminescence of the Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN thin film at room temperature. In the inset the show the yellow band luminescence.

를 앞 식에 적용하여 결정된 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN 박막의 Al 성분(x) 값은 15%이었다.

Fig. 3은 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN 박막에 대해 측정된 광전류 스펙트럼이다. Fig. 3(a)은 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN 박막 위에서 빛을 조사하여 측정된 스펙트럼인데, 2.23 eV 근처의 broad한 peak와 3.40, 3.70 eV 등 3개의 peak가 나타났다. 여기에서 2.23 eV 부근에서 관측된 broad한 peak는 조사되는 빛의 투과깊이 등을 고려하면 GaN층에서 흔히 관측되는 YB luminescence와 관련된 peak로 보이며, 3.40 eV peak는 GaN의 띠간격에 해당하는 peak이고, 3.70 eV peak

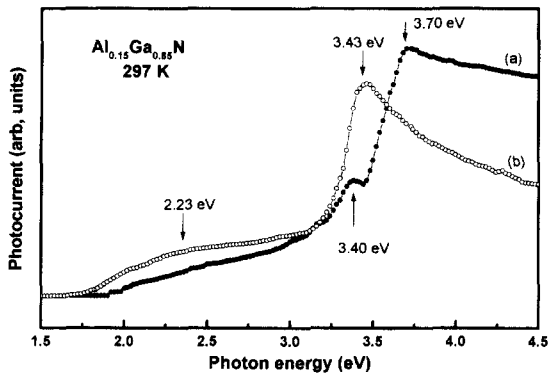


Fig. 3. (a) Photocurrent spectrum measured at bias voltage 1.5 voltage for 2000 Å Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN thin film, for illumination provided from the top of the sample (full circles). (b) photocurrent spectrum obtained by illumination from the bottom of the sample (hollow circles).

는 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N의 띠간격으로 PL에서 얻어진 결과와 잘 일치한다. Fig. 3(b)은 기관 쪽에서 빛을 조사시켜 측정된 광전류 스펙트럼이다. 광을 위에서 조사시켰을 때 PC peak는 GaN층과 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N층에서 생성된 모든 free carrier들의 영향 때문에 광전류가 증가하게 될 것이다. 따라서 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N 박막 층의 순수한 광전류 특성을 구별하기 위해 기관 쪽에서 빛을 조사시키면서 측정하였다. 측정된 광전류 스펙트럼은 저 에너지 쪽의 broad한 peak의 세기가 증가하였고, 3.43 eV의 peak만이 나타났을 뿐 GaN 띠간격 위의 peak들은 상대적으로 위에서 빛을 조사시켰을 때보다 광전류의 세기가 크게 감소하였다. 이것은 GaN층에서 photon들을 흡수하여 생성된 free carrier들이 광전류에 기여하는 영향이 지배적이기 때문에 GaN에서 나오는 YB luminescence와 관련된 것으로 보이는 2.23 eV 부근의 광전류의 세기가 증가한 것이며, GaN 띠간격 위의 광전류가 크게 감소한 것으로 생각된다. 따라서 사파이어 기판 위에 성장된 GaN층은 dislocation 등 많은 defect 준위들이 띠간격 내에 존재하여 AlGaIn층에 영향을 주는 것으로 생각된다. 이 같은 현상은 Dang[4] 등이 n-형 AlGaIn/GaN hetrostructure에서 관측하여 보고한 결과와 잘 일치하며, GaN의 띠간격 내에 존재하는 넓은 defect 준위 분포를 보여준 Qiu[13] 등의 PC결과와도 유사하다.

Fig. 4는 시료에 조사되는 빛의 에너지를 변화시키면서 측정된 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN 박막에 대한 PPC 스펙트럼이다. 현재까지 GaN를 기초로 한 질화물 반도체에서 나타나는 PPC 현상은 YB luminescence가 존재하는 시료에서 관측되는 것으로, PPC의 원인을 주로 Ga vacancy로 설명하고 있다[14]. 일반적으로 PPC spectrum은 암전류 상태에서 시료에 빛을 조사하게 되면 광전류가 증가하다가 어느 시간에 이르게 되면 안정된 전류 값에 도달하게 된다.

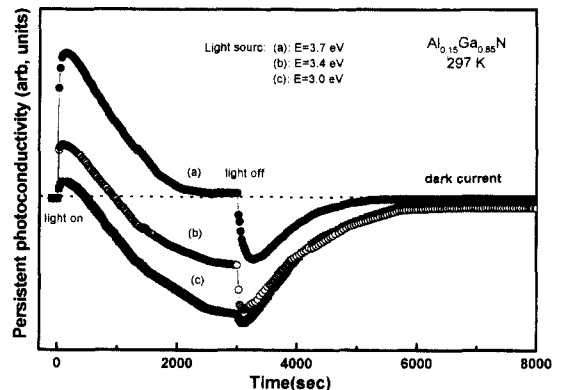


Fig. 4. Build-up and decay behavior of persistent photoconductivity in the Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN thin film at room temperature. The spectra was excited by a light source at 3.7 eV (a), 3.4 eV (b) and 3.0 eV (c), respectively.

이때 광을 차단하면 광전류는 빠른 decay 현상과 함께 느린 decay 현상이 뒤따라 나타나게 된다. 이것은 반도체 내에 두 개 이상의 깊은 준위들이 존재할 때 나타나는 일반적인 현상으로 광조사로 인하여 발생하는 과잉의 전자와 정공쌍의 재결합으로 인한 광전류의 빠른 decay가 나타나고, 뒤이어 깊은 준위에 포획된 carrier들이 열적으로 방출되면서 느린 decay 현상이 나타나는 것으로 해석된다. 그런데, 우리시료에서 관측된 PPC 현상은 Fig. 4에서 보여 주듯이 빛을 계속 조사시키는데도 불구하고 어느 시간이 지난 후에는 광전류가 감소하는 photocurrent quenching 현상이 일어났으며, 이 상태에서 빛을 제거했을 때는 negative dark current 현상이 나타나다가 다시 암전류 위치로 회복되는 비정상적인 PPC 현상을 나타냈다. 이 같은 현상은 지금까지 보고된 n-형 GaN[6], p-형 GaN[7, 8], AlGaIn[9]에서 관측된 두 개 이상의 깊은 준위들이 존재할 때 나타나는 PPC 결과와는 아주 다른 현상이다.  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막의 띠간격에 해당하는 빛을 조사시키면 Fig. 4(a)와 같이 photocurrent quenching이 일어나지만 암전류 이하로는 떨어지지 않으나 이 상태에서 빛을 차단하면 negative dark current 현상이 나타난다. 그런데, Fig. 4(b)와 Fig. 4(c)에서와 같이  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막의 띠간격보다 작은 빛을 조사시켰을 때 빛을 계속 줄 경우 광전류가 증가하다가 다시 암전류 이하로 광전류가 quenching되어 negative photocurrent 현상이 나타난다. 여기광의 투과깊이를 고려할 때  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막의 띠간격보다 작은 에너지의 빛일수록 투과깊이가 깊어져 dislocation 등 결함들이 많은 GaN층까지 영향을 주기 때문에 낮은 에너지일수록 photocurrent quenching이 강하게 나타난다고 생각된다. 이 같은 현상은 본 실험실에서 의도적으로 불순물을 doping 하지 않은 n-type GaN에서도 뚜렷히 나타났[15]. 그러나, AlGaIn층의 두께가 0.4~0.5  $\mu m$ 인 시료에서는 photocurrent quenching과 negative dark current 현상 등은 나타나지 않고 AlGaIn에서 보고되고 있는 일반적인 PPC 현상[13]과 같은 결과로 나타났다. 또한 AlGaIn층의 두께가 0.2  $\mu m$  이하 정도로 얇아도 GaN층의 두께가 3  $\mu m$  이상 되는 시료나, GaN층의 두께가 2  $\mu m$  이하라 할지라도 AlGaIn층의 두께가 0.4  $\mu m$  이상 되는 시료에서도 같은 결과가 얻어졌다. 따라서 AlGaIn층의 두께가 0.2  $\mu m$ 인 시료에서 관측된 비정상적인 PPC 현상은 GaN층 내에 형성된 metastable state에 의한 효과가 지배적으로 나타나는 것이 확실하다.

이상과 같은 PPC 실험에서 관측된 photocurrent quenching과 negative dark current 현상이 일어나는 mechanism은 다음과 같이 설명할 수 있다. 시료에 조사되는 빛에 의해 생성되는 자유전자와 자유정공들이 재결합 한 후 남아도는 자유정공들에 의해 광전류에 기여하는 자유전자와

재결합함으로써 전체적으로 carrier를 감소시키게 되는 결과라 생각된다. 광을 제거 한 후의 비정상적인 PPC 현상은 오랜 시간 광에 의해 생성된 광여기(photoexcited)된 전자들이 metastable state로 넘어가 있기 때문에 남아도는 정공들이 암전류에 기여하는 자유전자들과 재결합하기 때문이다. 또한 다시 암전류 상태로 회복되는 현상은 준안정적 상태에 있는 전자들이 오랜 시간을 가지고 potential 장벽을 넘어 다시 recovery되기 때문으로 해석되며, undoped GaN 박막내의 metastable state에 대한 물리적 origin은 연구 중에 있다.

#### 4. 결 론

MOCVD 방법으로 성장된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막에 대하여 상온에서 PL, PC, PPC 실험을 실시하였다. PL과 PC를 측정결과  $Al_xGa_{1-x}N/GaN$  박막의 띠간격은 3.70 eV로서 Al 성분(x)값은 15%이었다. PC측정에서 여기광을  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$  박막 층의 위쪽에서 조사시켰을 때는  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N$ 과 GaN의 띠간격에 해당하는 peak와 저에너지 쪽에서 YB luminescence와 관련된 peak 등 3개의 peak가 나타났으나, 기관 쪽으로부터 광을 조사시켜 측정하였을 때에는 GaN의 띠간격에 해당하는 peak와 YB luminescence와 관련된 broad한 peak 등 2개의 peak만이 나타났으며 YB luminescence와 관련된 peak의 세기도 상대적으로 증가하였다.

PPC 측정결과 빛을 계속 조사시키는데도 불구하고 광전류가 감소하는 photocurrent quenching과 광단속 후에는 광전류가 급격히 감소하다가 다시 암전류 상태로 회복되는 비정상적인 PPC현상이 나타났는데 이들은 여기광의 에너지에 강한 의존성을 나타냈다. 이같은 photocurrent quenching 현상은 시료에 조사되는 빛에 의해 생성되는 자유전자와 자유정공들이 재결합하고 남아도는 자유정공에 의해 광전류에 기여하는 전도대의 자유전자와 재결합함으로써 전체적으로 carrier를 감소시키게 되는 결과라 생각되며, 빛을 차단한 후의 negative dark current와 같은 비정상적인 PPC 현상은 GaN층의 영향으로 띠간격내에 형성된 metastable state에 전자들이 trap되고, trap된 전자들은 오랜시간을 가지고 potential barrier를 넘어 다시 암전류 상태로 회복되는 것으로 분석되었다.

#### 참 고 문 헌

- [1] S. Nakamura and T. mukai, Jan. J. Appl. Phys. 31, L1457 (1992), S. Nakamura and Y. Sugimoto, Appl. Phys. Lett. 68 (1996) 3269.

- [ 2 ] M. Razeghi and A. Rogalki, *J. Appl. Phys.* 79 (1996) 7433.
- [ 3 ] E. Monroy, F. Calle, C. Angulo, P. Vila, A. Sanz, J. A. Garrido, E. Munoz, E. Calleja, B. Beaumont, F. Omnes and P. Gibart, *Appl. Opt.* 37 (1998) 5058.
- [ 4 ] X.Z. Dang, C.D. Wang, E.T. Yu, K.S. Boutrous and J.M. Reding, *Appl. Phys. Lett.* 72 (1998) 2745.
- [ 5 ] G. Steude, B.K. Meyer, A. Goldner, A. Hoffmana and F. Bertram, J. Christen, H. Amano, I. Akasaki, *Appl. Phys. Lett.* 74 (1996) 2456.
- [ 6 ] G. Beadie, W.S. Rabinovich, A.E. Wickden, D.D. Koleske, S.C. Binari and J.A. Freitas, Jr, *Appl. Phys. Lett.* 71 (1997) 1092.
- [ 7 ] C. Johnson, J.Y. Lin, H.X. Jiang, M. Asif Khan and C.J. Sun, *Appl. Phys. Lett.* 68 (1996) 1808.
- [ 8 ] C.H. Qiu and J.I. Pankove, *Appl. Phys. Lett.* 70 (1997) 1983.
- [ 9 ] L.Z. Li, J.Y. Lin, H.X. Jiang, M. Asif khan, and Q. Chen, *J. Appl. Phys.* 82 (1997) 1227.
- [10] B. Monemar, *Phys. Rev. B* 10 (1974) 676.
- [11] W.M. Yim, E.J. Stofko, P.J. Zanzucchi, J.I. Pankove, M. Ettenberg and S.L. Gilbert. *J. Appl. Phys.* 44 (1973) 292.
- [12] K. Itoh, H. amano, K. Hiramatsu and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* 30 (1991) 1604; K. Itoh, H. amano, K. Hiramatsu and I. Akasaki, *J. Cryst. Growth* 104 (1990) 533.
- [13] C.H. Qiu, C. Hoggatt, W. Melton. M.W. Leksono and J.I. Pankove, *Appl. Phys. Lett.* 66 (1995) 2712.
- [14] C.V. Reddy, K. Balakrishnan, H. Okumura and S. Yoshida, *Appl. Phys. Lett.* 73 (1998) 244.
- [15] S.J. Chung, M.S. Jeong, O.H. Cha, C.-H. Hong, E.-K. Suh, H.J. Lee, Y.S. Kim and B.H. Kim, submit to *Appl. Phys. Lett.* unpublished.