

## 분자선증착법으로 성장된 AlGa<sub>1-x</sub>N 에피층의 표면 형상 분석

김제원 · 최인훈 · 박영균\* · 김용태\*

고려대학교 재료공학과

\*한국과학기술연구원, 반도체연구소

### Surface Morphology Study of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N grown by Plasma Induced Molecular Beam Epitaxy

Je Won Kim, In-Hoon Choi, Young K. Park\* and Yong Tae Kim\*

Department of Materials Science, Korea Univ., Seoul 136-701

\*Korea Institute of Science and Technology, Semiconductor Materials Laboratory, P.O. BOX 131, Cheongryang, Seoul 130-650

(1999년 5월 19일 받음, 1999년 7월 14일 최종수정본 받음)

**초 록** 분자선증착법으로 (0001) 사파이어 기판 위에 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층을 AlN 물비를 변화시키면서 성장시켰다. AlN 물비는 0.16 에서 0.76 까지 변화시켰으며 X선 회절 실험과 Rutherford backscattering spectroscopy 방법을 이용하여 AlN 물비를 결정하였다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 깊이 방향의 조성 변화를 관찰하였으며 스퍼터 시간에 대해 각 원소가 일정한 원자 농도를 가짐을 알 수 있었다. AlN 물비의 증가에 따른 표면 특성의 변화를 관찰하기 위하여 atomic force microscopy 측정을 수행하였다. 표면에서의 입자 모양이 AlN 물비가 변화함에 따라 원형에서 침상형태로 변화함을 알 수 있었다. 표면 입자에 대한 root mean square 값과 average roughness 값을 구하였으며 AlN 물비를 바꿈에 따라 나타나는 변화를 관찰하였다.

**Abstract** Structural properties of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers grown on (0001) sapphire substrate by plasma induced molecular beam epitaxy are investigated in the range of AlN molar fraction from 0.16 to 0.76. The AlN molar fraction estimated by X-ray diffraction agrees well with that of Rutherford backscattering spectroscopy, showing a good linear relationship. The uniform Auger electron microscopy depth profile and linear dependence of average atomic concentration of all the constituents of AlGa<sub>x</sub>N epilayers on AlN molar fraction imply that the epitaxial growth of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N layers with variation of AlN molar fraction is well controlled without the compositional fluctuation in depth of the epilayer. It is observed by atomic force microscopy that the surface grain shape of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayer changes from roundish to coalesced one with increasing AlN molar fraction.

### 1. 서 론

III-nitride에 기초한 light-emitting diode (LED) 나 laser diode (LD) 의 개발은 InGa<sub>x</sub>N 와 AlGa<sub>x</sub>N의 특성 연구에 큰 기여를 해오고 있다.<sup>1)</sup> 이중 AlGa<sub>x</sub>N 화합물은 직접 천이형 물질로서 띠틈폭이 3.43 eV 에서 6.2 eV 사이에서 변화한다. 따라서 AlGa<sub>x</sub>N 화합물의 광과장은 가시광선 영역에서 자외선 영역까지 포함하고 있으며 이러한 광특성에 의해 AlGa<sub>x</sub>N 화합물은 가시광선 및 자외선 영역의 소자 제작에 매우 유용하게 응용되고 있다. 또한 높은 이동도와 높은 양자 효율 등의 특성에 의해 고출력 고온 전자 소자<sup>2-4)</sup> 및 높은 전자 이동도를 가지는 트랜지스터나 자외선 광검출기에 폭넓게 응용되고 있다.<sup>5-9)</sup> AlN와 GaN 사이에 존재하는 작은 격자 부정합은 소자의 성능 향상을 위한 이중 접합 개발에 AlGa<sub>x</sub>N 화합물이 매우 유용하게 이용될 수 있음을 보여주고 있다. 이러한 특성을 가지는 AlGa<sub>x</sub>N 화합물의 띠틈폭을 조절하기 위해서는 AlN 물비에 따른 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 구조적 특성 분석이 필수라 할 수 있다. 지금까지는 여러 가지 기판 위에 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 성장 메커니즘의 확립에 연구가 집중되어졌다고 할 수 있으나 AlN 물비에

따른 hexagonal Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 구조적 특성 분석에는 연구가 다양하게 이루어지지 않고 있다.<sup>10-12)</sup>

본 연구에서는 (0001) 사파이어 기판 위에 분자선증착법 (molecular beam epitaxy) 을 이용하여 AlN 물비를 변화시키면서 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층을 성장시켰다. AlN 물비를 0.16에서 0.76까지 변화시키면서 각 AlN 물비에 따른 시편의 표면 특성과 원소 농도의 깊이 방향의 변화를 관찰하였다. 우선 AlN 물비는 Rutherford backscattering spectroscopy (RBS) 와 X선 회절 실험 (X-ray diffraction spectroscopy, XRD) 을 이용하여 결정하였다. AlGa<sub>x</sub>N 화합물 각 원소의 깊이 방향의 변화를 관찰하였으며 각각의 원소가 전체적인 스퍼터 시간 (sputter time) 에 대해 검출되는 양을 원자 농도의 단위로 표시하여 변화량을 관찰하였다. AlN 물비에 따라 변화하는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 표면 형상과 특성을 조사하였으며 표면 입자 (grain) 들의 모양이 AlN 물비가 바뀔 때 따라 변화하는 양상을 atomic force microscopy (AFM) 이미지를 통하여 나타내었다. 또한 입자의 높낮이를 비교하기 위하여 root mean square (RMS) 와 average roughness 값이 측정되었으며 AlN 물비의 변화에 따른 값의 변화도 관찰하였다.

## 2. 실험

Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층을 플라즈마 방법이 적용된 분자선증착법에 의해 buffer 층 없이 c-plane 사파이어 기판 위에 성장시켰다.<sup>13~15)</sup> 질소 라디칼의 생성을 위해 radio frequency (rf) 플라즈마 발생기를 이용하였으며 알루미늄 (Al)과 갈륨 (Ga)은 일반적인 분출셀 (effusion cell)을 사용하였다. 플라즈마를 이용한 원자 라디칼 생성기는 Oxford Applied Research CARS-25 장비를 사용하였으며 이온종 (ionic species)을 사용하는 것에 비해 성장중 이온에 의한 충격을 줄일 수 있는 장점이 있다. 사용된 플라즈마 발생기의 출력은 400 W 이며 성장 실험 전 MBE 내부 압력은  $1 \times 10^{-10}$  mbar이었다. 성장중 MBE 내부 압력은  $4 \times 10^{-5}$  mbar였다. Ga과 Al 분자선은 전체가  $8 \times 10^{14}$  cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>를 유지하였으며 성장 속도는 0.6 μm/h였다. Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 성장 온도는 810 °C이었으며 AlN 물비는 0.16에서 0.76 까지 변화시켰다. 분출셀 온도에 의해 조절된 AlN 물비는 RBS와 XRD 실험에 의해 보정되었다. RBS와 scanning electron microscopy (SEM)에 의해 측정된 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 두께는 약 1 μm이었다. 깊이 방향의 AlGa<sub>1-x</sub>N 화합물 각 원소의 분포를 알아보기 위하여 스퍼터 시간에 대해 원소의 원자 농도를 Auger electron spectroscopy (AES) 방법을 이용하여 측정하였다. 실험에 사용된 AES는 Microscopy Physical Electronics PHI680 모델이었다. AlN 물비에 따른 표면 변화를 관찰하기 위하여 상온과 상압에서 AFM 실험을 수행하였으며 실험에 사용된 AFM 장치는 optical lever deflection 메커니즘이 적용된 SFM-BD2 (Park Scientific Instruments) 모델을 사용하였다. X선 회절 실험은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 결정성을 조사하기 위하여 사용되었으며 AlN 물비의 결정에도 이용되었다.

## 3. 결과 및 고찰

(0002)와 (0004) 면에 대해 RBS에 의해 결정된 AlN 물비와 XRD에 의해 측정된 AlN 물비가 Fig. 1의 삽입된 그림에 비교되어져 있다. 그림에서 solid circle은 AlGa<sub>1-x</sub>N 화합물의 (0002) 면에 대한 RBS와 XRD에 의한 물비이며 open circle은 (0004) 면에 대한 RBS와 XRD에 의해 결정된 물비이다. 가로축에 나타난 0은 GaN를 나타내며 AlGa<sub>1-x</sub>N 화합물에서 AlN의 물비가 증가하다가 1이 되면 AlN가 된다. 삽입된 그림에서와 같이 XRD에 의해 결정되어진 AlN 물비가 RBS 측정치와 잘 부합하고 있음을 알 수 있다. 또한 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 깊이 방향에 대한 각 원소의 농도의 변화를 알아보기 위하여 AES 실험을 수행하였으며 결과가 Fig. 1에 제시되어져 있다. 질소의 원자 농도는 전 스퍼터 시간에 걸쳐 균일하게 나타났으며 또한 Al과 Ga도 역시 스퍼터 시간에 대해 균일한 원자 농도를 나타내었다. 탄소와 산소 같은 불순물의 농도도 주어진 스퍼터 시간에 대해 거의 검출되지 않았다. 따라서 본 실험에 사용된 AlGa<sub>1-x</sub>N 화합물의 각 원소의 원자 농도는 시편의 깊

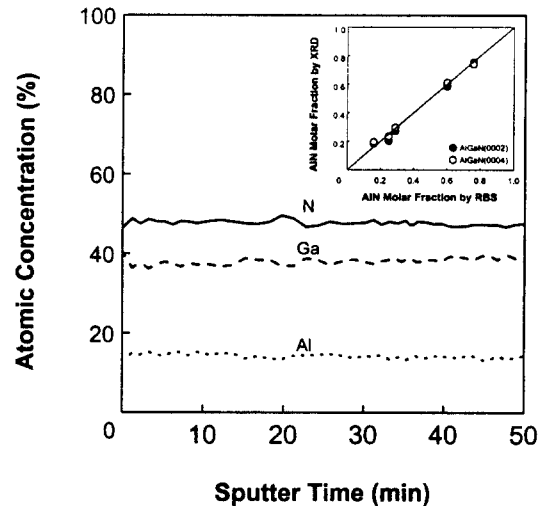


Fig. 1. AES depth profile of Al<sub>0.29</sub>Ga<sub>0.71</sub>N as a function of sputter time. Inset shows AlN molar fractions of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers determined by RBS and XRD.

이 방향에 대해 균일하게 분포되어 있음을 알 수 있었다. 스퍼터 시간에 대한 각 원소의 균일성은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 조성이 성장중 각 원소 조성의 급격한 변화 없이 잘 조절될 수 있음을 나타내고 있다.

광학 현미경으로 관찰된 AlGa<sub>1-x</sub>N 시편은 crack이 없는 거울면의 깨끗한 표면을 유지하고 있었다. AlN 물비에 따른 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 표면 형상이 Fig. 2에 제시되어져 있다. 실험에 사용된 AFM의 분해능은 10 nm 이며, AFM 상의 넓이는 1 μm × 1 μm 이다. Fig. 2에서 알 수 있듯이 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 표면은 촘촘히 분포되어진 입자 (grain)들로 형성되어져 있다. AlN 물비가 0.16인 경우 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 표면은 작고 둥근 입자가 고르게 분포되어져 있다. 이러한 모양의 표면 형상이 AlN 물비가 0.25로 증가하게 되면 입자 모양이 더욱 크고 둥근 형태로 바뀌게 되며, AlN 물비가 0.29가 되면 AlN 물비가 0.25일 때의 표면 형상의 특징이 좀 더 강하게 나타나게 된다. 즉, 입자 모양이 더욱 둥글고 편평해짐을 관찰할 수 있다. AlN 물비가 0.16에서 0.29까지 변화하는 동안 나타나는 표면 형상은 대체적으로 입자 크기와 조밀도의 변화이었으며 입자 모양은 둥근 형태로 일정하였다. 그러나 AlN 물비가 0.5를 초과하면 표면 형상이 기존의 원형의 입자 모양에서 다른 형태로 변화하는 것을 관찰할 수 있다. AlN 물비가 0.6인 경우의 표면 형상이 Fig. 2의 (d)에 나타나 있다. 그림에서와 같이 표면에서의 입자 모양이 AlN 물비가 0.5 아래인 경우와는 전혀 다르게 나타나고 있다. 우선 원형의 입자 모양이 날카로운 침상 형태로 변했음을 알 수 있으며 평균적인 입자의 높낮이도 역시 변화했음을 알 수 있다. 이러한 변화는 XRD 측정에서도 확인될 수 있는데, AlN 물비가 0.6으로 증가함에 따라 XRD 반치폭 (full width at half maximum)이 증가함을 알 수 있었다. 이러한 XRD 결과는 AlN 물비가 바뀔 때 따라 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 에피층의 결정성도 변화함을 보여주고 있다. 침상 형태의 표면 특성은 AlN

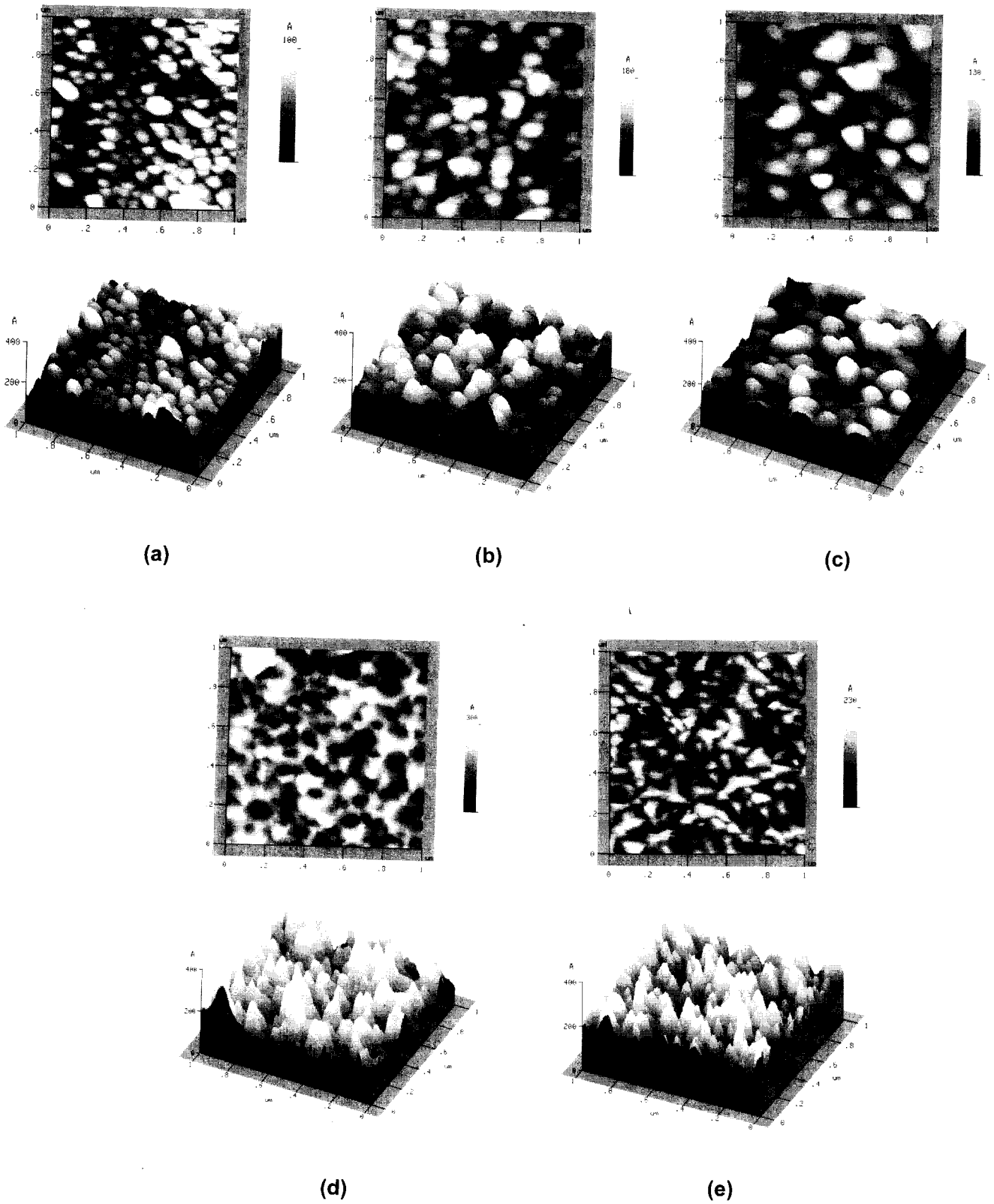


Fig. 2. AFM images of surface morphology of  $\text{AlGa}_{1-x}\text{N}$  as a function of AlN molar fraction : (a)  $\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}$ , (b)  $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ , (c)  $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{N}$ , (d)  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}$ , and (e)  $\text{Al}_{0.76}\text{Ga}_{0.24}\text{N}$ .

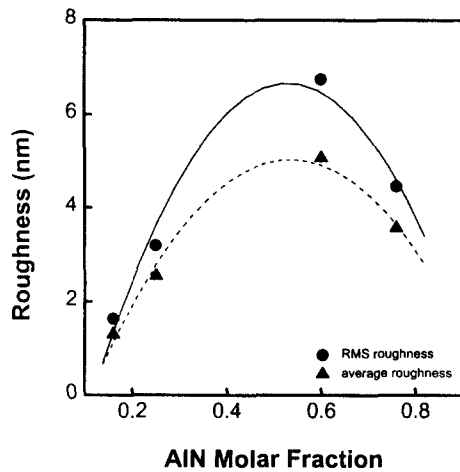


Fig. 3. RMS and average roughness estimated by AFM images as a function of AlN molar fraction.

몰비가 0.76인 경우 더욱 날카롭고 조밀해진 입자 형태로 바뀌게 된다.

입자 높낮이의 변화를 관찰하기 위하여 RMS 와 average roughness 라는 값이 도입될 수 있다. RMS roughness는 best-fit line으로부터 데이터의 표준 편차 (standard deviation)이며 average roughness는 best-fit line으로부터 데이터의 산술 평균 편차 (arithmetic mean deviation) 이다. Fig. 3에서 AlGaIn 에피층의 RMS와 average roughness 값의 변화가 AlN 몰비에 따라 제시되어져 있다. AlGaIn 에피층의 RMS와 average roughness 값은 AlN 몰비가 0.6이 될 때까지 증가하게 된다. 이러한 변화는 표면 형상이 둥글고 편평한 상태에서 침상형태로 바뀌에 의해 나타나는 현상이라 여겨진다. 또한 Fig. 3에서 볼 수 있듯이 RMS와 average roughness 값이 AlN 몰비가 0.6에서 0.76으로 바뀔 때 감소하는 경향을 보이고 있다. 즉 Al<sub>0.76</sub>Ga<sub>0.24</sub>N의 RMS 값이 Al<sub>0.6</sub>Ga<sub>0.4</sub>N 보다 낮은 값을 가지게 된다. 이러한 변화도 역시 표면 입자의 변화에 기인한다고 여겨진다. AlN 몰비가 0.76인 경우 0.6에 비해 좀 더 작고 조밀한 침상 형태의 입자 모양으로 변화하게 됨을 알 수 있다.

AlN 몰비가 증가하면서 나타나는 둥근 형태의 입자들이 침상 형태로 변화하게 되는 것은 AlGaIn 에피층이 이원합금에서 삼원합금으로 변화함에 따라 나타나는 구조적 변화와 사파이어 기판과 AlGaIn 에피층 사이에 존재하는 격자 부정합에 의한 misfit strain과 밀접한 관련이 있다고 여겨진다. Akasaki 연구진 등에 의해 AlGaIn 에피층의 성장에 buffer 층을 도입하게 되면 에피층의 결정성이 증가됨이 보고되고 있다.<sup>16)</sup> 그러나 본 연구에서는 AlGaIn 에피층의 결정성보다는 AlN 몰비의 변화에 따른 표면 특성의 변화에 좀 더 관심을 가지고 관찰하였다. 본 연구를 기반으로 buffer 층의 도입에 따른 AlGaIn 에피층의 표면 특성과 결정성의 변화도 관찰될 수 있으리라 여겨진다.

#### 4. 결 론

AlN 몰비가 0.16에서 0.76 까지 변화하는 AlGaIn 에피층의 몰비를 결정하였으며 표면 특성을 조사하기 위하여 AFM 측정을 수행하였다. 관찰되어진 AFM 상에 의하면 AlN 몰비가 증가할수록 표면 입자의 모양이 작고 조밀한 둥근 형태에서 크고 넓은 원형으로 바뀌었으며 AlN 몰비가 0.6 이상에서 입자 모양이 원형에서 침상 형태로 변화하게 됨을 알 수 있었다. AlGaIn 에피층에 대한 XRD 반치폭을 측정된 결과 AlN 몰비가 증가함에 따라 증가하였으며 AFM 측정에 의해 구할 수 있는 RMS 값에 의해서도 AlN 몰비가 증가함에 따라 값이 증가함을 볼 수 있었다. 그러나 AlN 몰비가 0.76인 경우 0.6에 비해 입자 모양이 거친 침상 형태에서 좀 더 작고 조밀한 침상 형태로 바뀌게 되고 RMS 값도 변화하게 된다. 이러한 표면 특성의 연구를 통하여 AlGaIn 에피층의 몰비에 따른 표면 입자의 변화를 관찰할 수 있었으며 buffer 층의 도입에 따른 AlGaIn 에피층의 변화에 대한 구조적 특성 연구에도 도움을 주리라 여겨진다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부와 산업자원부(Contract No. 2M08380, 2M08790)와 한국과학기술연구원(Contract No. 2E15940, 2V00332)의 지원에 의해 수행되었으며, 저자중 한명인 김 재원은 본 연구를 위하여 독일 뮌헨 공대에 방문 연구를 지원해 준 한국과학재단에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. S. Nakamura, M. Senoh, S. I. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1568 (1997).
2. M. A. Khan, A. Bhattarai, J. N. Kuznia, and D. T. Olson, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1214 (1993).
3. J. Z. Li, J. Y. Lin, H. X. Jiang, M. A. Khan, and Q. Chen, *J. Appl. Phys.* **82**, 1227 (1997).
4. V. E. Bougrov and A. S. Zubrilov, *J. Appl. Phys.* **81**, 2952 (1997).
5. M. A. Khan, J. N. Kuznia, D. T. Olson, W. J. Schaff, J. W. Burm, and M. S. Shur, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1121 (1994).
6. D. Walker, X. Zhang, P. Kung, A. Saxler, J. Xu, and M. Razeghi, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2100 (1996).
7. S. Imanaga and H. Kawai, *J. Appl. Phys.* **82**, 5843 (1997).
8. G. Y. Xu, A. Salvador, W. Kim, Z. Fan, C. Lu, H. Tang, H. Morkoç, G. Smith, M. Estes, B. Goldenberg, W. Yang, and S. Krishnankutty, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2154 (1997).
9. A. Osinsky, S. Gangopadhyay, B. W. Lim, M. Z.

- Anwar, M. A. Khan, D. V. Kuksenkov, and H. Temkin, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 742 (1998).
10. F. A. Ponce, J. S. Major, Jr., W. E. Plano, and D. F. Welch, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 2302 (1994).
11. Y. Ohba, H. Yoshida, and R. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1565 (1997).
12. A. Y. Polyakov, M. Shin, J. A. Freitas, M. Skowronski, D. W. Greve, and R. G. Wilson, *J. Appl. Phys.* **80**, 6349 (1996).
13. J. W. Kim, C. S. Son, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, *J. Korean Vac. Soc.*, **8**, 153 (1999).
14. J. W. Kim, C. S. Son, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, *Abstracts of the 9th International Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications* (Seoul, Korea, 1998) p. 95.
15. J. W. Kim, I. H. Choi, Y. K. Park, and Y. T. Kim, *J. Kor. Phys. Soc.* **34**, S378 (1999).
16. J. W. Kim, C. S. Son, I. H. Choi, Y. K. Park, Y. T. Kim, O. Ambacher, and M. Stutzmann, *Abstracts of the 4th International Conference on Electronic Materials* (Cheju, Korea, 1998) p. 94.
17. I. Akasaki and H. Amano, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **339**, 443 (1994).