

InGaN/GaN 양자우물의 SA-MOVPE에서 표면확산을 고려한 박막성장 해석

임익태[†] · 윤석범

[†]전북대학교 공과대학 기계설계공학부

Analysis of Film Growth in InGaN/GaN Quantum Wells Selective Area Metalorganic Vapor Phase Epitaxy including Surface Diffusion

Ik-Tae Im^{*†}, Suk Bum Youn

^{†*}Dept. of Mechanical Design Eng., College of Eng., Chonbuk National University

Abstract

Film growth rate and composition variation are numerically analyzed during the selective area growth of InGaN on the GaN triangular stripe microfacet in this study. Both the vapor phase diffusion and the surface diffusion are considered to determine the In composition on the InGaN surface. To obtain the In composition on the surface, flux of In atoms due to the surface diffusion is added to the concentration determined from the Laplace equation which is governing the gas phase diffusion. The solution model is validated by comparing the growth rates from the analyses to the experimental results of GaN and InN films. The In composition and resulting wave length are increased when the surface diffusion is considered. The In content is also increased according to the increasing mask width. The effect of mask width to the In content and wave length is increasing in the case of a small open region.

Key Words : InGaN/GaN MQWs, metalorganic vapor phase epitaxy, selective area growth, vapor phase diffusion, surface diffusion

1. 서 론

GaN 마이크로 결정면에 InGaN 박막을 성장시킨 InGaN/GaN 양자우물을 이용한 발광다이오드(LED)는 넓은 발광파장, 높은 효율, 저독성 및 긴 수명으로 인해 점차 사용이 늘어나고 있다. 최근 유기금속 기상증착법(metal organic vapor-phase epitaxy, MOVPE)으로 성장시킨 InGaN/GaN 다중 양자우물(multiple-quantum wells, MQWs)이 디스플레이나 레이저 다이오드 등을 위한 LED로 성공적으로 사용되고 있다.

선택적 영역 성장(selective area growth, SAG)기법은 MOVPE를 이용한 반도체 재료의 박막성장에 많이 이용되어왔다. 최근에는 이 방법을 이용하여 단면이 삼각형인 띠(stripe) 형태나 육각형 피라미드 형태의

InGaN/GaN MQWs를 제작하고 이를 이용하여 LED를 제작하고자 하는 연구가 이루어지고 있다[1]. 이 방법은 SAG GaN 성장면에 InGaN/GaN양자우물을 증착하는 것이다. 이 경우 마이크로 경사면에 형성된 InGaN/GaN QWs는 경사면의 위치에 따라 In의 조성과 InGaN 막의 두께가 다르게 된다[2]. 따라서 SAG기법을 이용하여 높은 효율의 LED를 제작하기 위해서는 막의 성장과정에서의 물질전달현상에 대해 이해하는 것이 매우 중요하다.

SAG 성장기법에서는 기관상에서 막이 성장하는 영역과 마스크를 이용하여 성장하지 못하도록 한 영역이 존재한다. 이때 막이 성장하지 않는 마스크 영역에서는 원료 기체의 농도가 높아지고 막이 성장하는 영역에서는 원료 기체가 소비되므로 상대적으로 기체의 농도가 낮아지게 된다. 따라서 농도가 높은 마스크 위 영역에서 막이 성장하는 영역 쪽으로 기체의 확산이 일어나

[†]E-mail : itim@jbnu.ac.kr

며 이 때문에 마스크에 인접한 부분의 막의 성장속도가 빠르게 된다. 이와 같이 기상에서의 확산현상을 이용하여 SAG기법으로 성장시킨 막의 성장률을 예측하는 것이 기상확산 모델(vapor phase diffusion, VPD)모델이다. 막의 성장영역이 비교적 넓은 경우 이 모델은 막의 성장률을 성공적으로 예측하였다[3, 4]. 최근에는 VPD모델을 이용하여 질화계 반도체의 박막성장기구에 대해 연구하고 이를 이용하여 다양한 파장을 구현하고자 하는 연구도 이루어지고 있다[5-7].

박막표면에 부착된 원자의 표면확산은 SAG기법으로 성장시킨 InGaN/GaN MQW에서 위치에 따라 다른 조성이나 성장률의 원인으로 생각되고 있다. 표면확산은 III-V 박막에서 마스크 영역의 성장율을 정확히 예측하기 위하여[8] 고려되었으며 InGaN의 경우 사다리꼴 형태의(ridge shape) 성장과정에 대한 연구가 보고되어 있다[2, 9]. 그러나 Fig. 1에 나타난 것과 같은 삼각형 스트라이프나 육각형 피라미드 형태의 InGaN 박막에서의 표면확산에 대한 연구는 이루어지지 않고 있다. 따라서 본 연구에서는 최근 LED를 위해 많은 연구가 이루어지고 있는 삼각형 스트라이프 형태의 InGaN/GaN MQW 공정에서 표면확산을 고려한 박막성장률과 조성을 예측하고 이를 바탕으로 방출파장을 예측하였다. 또한 마스크의 크기 변화가 조성과 파장에 미치는 영향에 대해서도 분석하였다.

2. 해 석

SAG-MOVPE 공정에서 박막성장은 주로 기상확산과 표면확산에 의해 이루어진다. Fig. 1과 같이 지면에

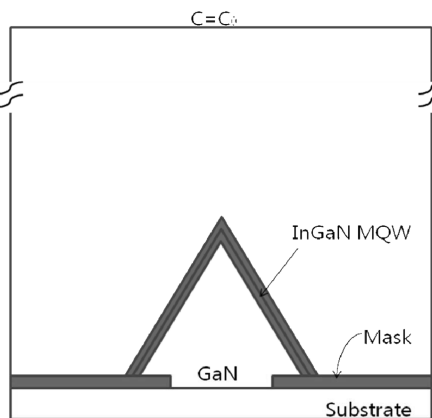


Fig. 1. Schematics of the cross sectional view of the triangular stripe InGaN/GaN MQW structure grown by SAG.

수직한 방향으로 긴 스트라이프의 경우 단면에 대해 2차원 해석이 가능하며 이때 해석영역은 표면 바로 위의 확산형상이 지배적인 정지영역(stagnant layer)이 선택된다. 해석영역에 대해 기상확산현상을 먼저 고려하여 박막 바로 위의 농도를 구한 후 표면 확산에 의한 농도변화를 기상확산에서 구한 농도에 더하여 박막의 성장률과 조성을 예측한다.

기판 바로 위의 정지영역에서 박막성장속도를 제어하는 기체의 농도 C 에 대한 확산 방정식은

$$\nabla^2 C = 0 \quad (1)$$

이다. 경계조건은 박막이 성장하는 영역에서는

$$-(D\nabla C) \cdot \vec{n} = k_s C \quad (2)$$

이며 마스크에서는

$$-(D\nabla C) \cdot \vec{n} = 0 \quad (3)$$

와 같이 쓸 수 있다. 여기서 $D(\text{m}^2/\text{s})$ 는 기체의 확산 계수이며 $k_s(\text{m/s})$ 는 표면반응상수, \vec{n} 은 표면에 수직한 단위벡터이다. 기판의 반대쪽인 해석영역 상부의 농도는 균일하며($C = C_0$) 해석 영역의 왼쪽과 오른쪽 측면에는 대칭조건을 부여한다. 이와 같은 VPD모델에서 박막의 성장을 제어하는 유일한 변수는 D/k_s 이다. InN와 GaN에 대해 실험과 이론적 시뮬레이션 결과를 비교하여 각각의 D/k_s 값이 보고 되어있다[6, 7]. InGaN의 경우에는 In원자의 부착이 Ga원자의 부착과 연관되어 있어서 GaN의 D/k_s 값과 유사하다는 연구결과가 있으며[6, 7] 본 연구에서도 이에 따라 GaN의 값과 유사한 $D/k_s = 10 \mu\text{m}$ 의 값을 사용하였다.

경사면을 따라 이동하는 In원자의 표면확산은 보존 법칙으로부터 계산할 수 있다. 마스크에서 경사면을 따르는 좌표를 x 라 하면 표면확산은 다음 식 (4)로 기술할 수 있다[2, 10, 11].

$$\frac{\partial C_s}{\partial t} = D_s \frac{\partial^2 C_s}{\partial x^2} - \frac{C_s}{\tau} \quad (4)$$

여기서 C_s 는 표면에서의 In의 농도, t 는 면에 부착한 원자의 평균부착시간(mean life time)이다. 식(4)를 통해 구한 표면의 농도를 VPD 모델에서 구한 값에 더하여 성장률을 계산한다.

식 (1)과 경계조건으로 주어지는 기상확산에 대한 방정식은 수치해석을 통해 풀이하였다. 지배방정식을 막이 성장하는 영역의 길이를 대표길이로 하여 무차원화하여 풀이하였으며 따라서 $C_0 = 1$ 로 주어진다. 식 (4)로 주어지는 표면확산현상은 미분방정식의 풀이와 간단한 Fortran 프로그래밍을 통해 해를 구하였다.

3. 결과 및 토의

3.1. 해석 모델 및 풀이 방법의 타당성 검증

해석 모델과 수치해석법의 타당성을 검증하기 위하여 먼저 실험결과가 보고되어 있는 GaN와 InP의 (100)면의 성장과정에 대해 해석을 수행하였다. 먼저 GaN의 경우에는 VPD 모델에 의한 해석을 실시하였으며 이를 실험결과[7]와 비교하였다. 이 때 D/k_s 의 값은 50 mm로 하였다. Fig. 2는 마스크 폭의 변화에 따른 성장을 증가 (growth rate enhancement, GRE)를 나타낸다. 여기서 GRE는 마스크가 없다고 가정한 경우의 성장률에 대한 실제 성장률의 비로서 다음 식과 같이 정의 된다.

$$GRE = \frac{R}{R_p} \frac{C_s}{C_{sp}} \quad (5)$$

여기서 R 은 성장률, 하첨자 p 는 마스크의 영향을 받지 않은 곳의 값을 나타낸다. 세 가지 마스크 폭에 대한 해석결과가 실험결과와 잘 일치하고 있음을 볼 수 있다. InN의 경우 실험[11]에서 막이 성장하는 영역과 마스크의 폭은 각각 $60 \mu\text{m}$ 와 $30 \mu\text{m}$ 이며 D/k_s 의 값은 $30 \mu\text{m}$ 이다. Fig. 3의 (a)와 (b)는 각각 해석을 통해 얻은 InN의 성장률과 막의 두께를 나타내며 스텝은 실험에서 성장률을 측정하기 위해 사용한 InGaAs 마커 층을 나타낸다. 성장영역의 끝 부근인 $30 \mu\text{m}$ 부근에서 마스크의 영향으로 성장률이 높게 나타나는 것(GRE)을 볼 수 있다. Fig. 3(a)의 성장률은 살펴보면 표면확산에 의해 VPD 모델에 의한 결과보다 각 스텝의 성장률이 높은 것을 볼 수 있다. 여기에 실험결과를 나타내지는 않았지만 참고문헌[11]의 결과와 비교해 볼 때 본 해석 결과는 실험결과와 잘 일치하며 따라서 본 연구의 해석 모델과 방법이 타당하다고 할 수 있다.

3.2. InGaN에 대한 해석

이제 Fig. 1에 나타낸 것과 같이 GaN 삼각형 스트라이프 위에 InGaN 박막을 형성하는 과정에 대해 표면확산을 고려하여 박막의 성장률을 해석하였다. 막이 성장하는 영역을 고정된 상태에서 마스크의 폭을 증가시

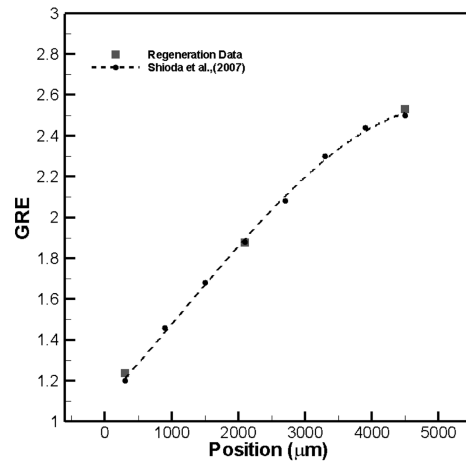
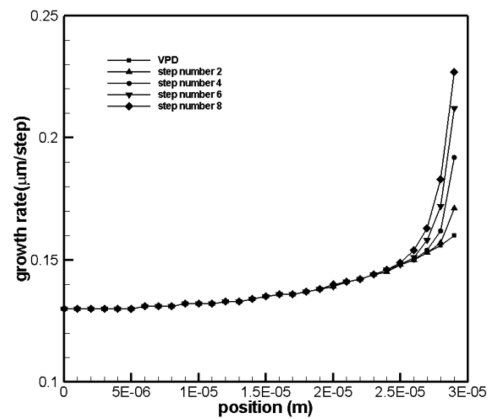
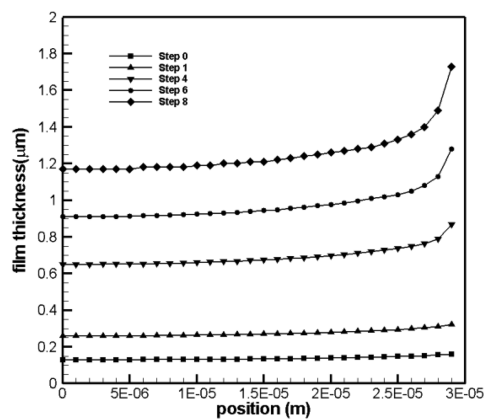


Fig. 2. Calculated growth rate enhancement for GaN film compared to the experimental results[7].



(a)



(b)

Fig. 3. (a) The predicted growth rate and (b) film thickness of InN layer at each step for the problem considered by Shioda et al[11].

키면서 해석을 수행하였다. Fig. 4는 성장영역이 2.0 μm인 경우에 대해 마스크 폭의 변화에 따른 GRE를 나타낸다. 막이 성장하는 영역에 비해 마스크의 폭이 커질수록 마스크의 영향이 커져서 GRE도 커진다. ‘VPD + SD’로 나타낸 결과는 표면확산을 고려한 결과로서 VPD만 고려한 결과보다 약간 높은 GRE를 나타낸다. 표면확산을 계산할 때 In 원자의 확산거리는 최대 120 nm[12]로 가정하였다.

Fig. 5는 표면확산을 고려했을 때와 VPD 모델만으로 계산했을 때의 In의 조성의 차이와 그에 따른 파장을 나타낸다. In 조성 x에 따른 Ga_{1-x}In_xN의 대역폭 에너지(bandgap energy)와 파장은 다음과 같이 주어진다.

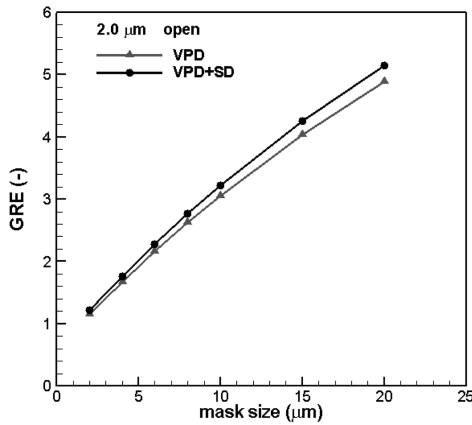


Fig. 4. Growth rate enhancement with surface diffusion (VPD+SD) and without surface diffusion (VPD) according to the mask size when the open region is 2.0 μm.

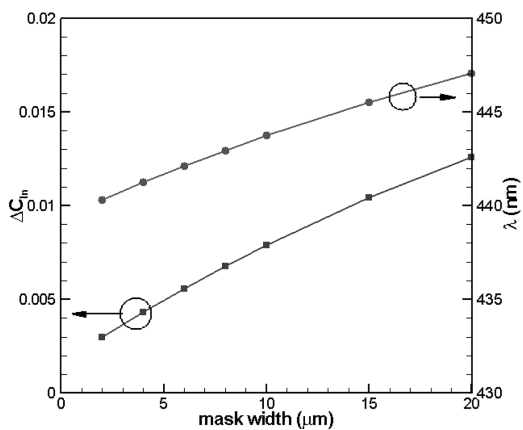


Fig. 5. In composition variation and resulting wave length according to the mask width when the open region is 2.0 μm.

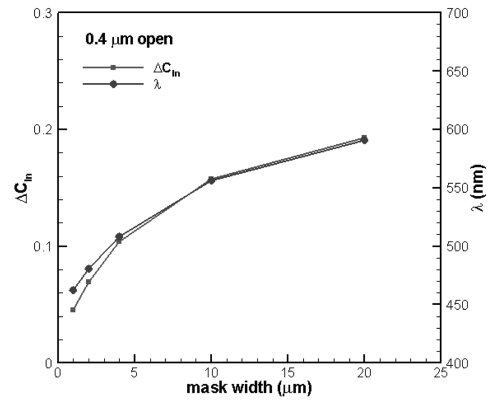


Fig. 6. In composition variation and resulting wave length according to the mask width when the open region is 0.4 μm.

$$E_g = 3.42 - 2.65x - 2.42(1-x)(eV) \quad (6)$$

$$\lambda = \frac{hc}{E_g} \quad (7)$$

여기서 h는 플랑크상수(6.626×10^{-34} Jps)이며 c는 빛의 속도(2.9979×10^8 m/s)이다. 마스크 폭이 증가함에 따라 표면확산에 의한 In의 조성도 증가하는데 이것은 마스크의 폭이 증가하면 결정면 위의 In의 농도가 높아지고 그에 따라 In원자의 플럭스가 증가하게 되어 표면에 부착하는 In원자의 양이 증가하면서 표면확산의 양도 증가하기 때문으로 보인다. 마스크 폭이 증가하면 In의 조성이 증가하므로 파장도 길어진다.

Fig. 6은 막의 성장영역이 0.4 mm로 매우 좁은 경우에 대한 해석결과이다. 마스크의 폭이 증가함에 따라 In의 조성이 증가하며 그에 따라 파장도 증가한다. 그러나 마스크의 폭이 증가함에 따른 In 조성의 증가폭은 감소하며 수렴하는 형태를 보인다. 막 성장영역이 좁기 때문에 마스크의 위에서 소비되지 않는 원료기체의 농도가 높아지며 이 때문에 GRE도 Fig. 4에 비해 높게 나타난다. 또 높은 In원자의 플럭스로 인해 In성분의 증가량도 성장영역이 넓은 경우보다 많으며 그에 따라 파장도 더욱 길어지게 된다.

4. 결 론

본 연구에서는 GaN 삼각형 스트라이프 위에 성장하는 InGaN/GaN 다중양자우물에서 InGaN 박막의 성장 과정에 대해 이론적으로 박막성장율과 In 조성 및 방출파장을 예측하였다. 해석은 기상확산(VPD) 모델에

서 얻은 조성에 표면확산 모델을 통해 얻은 조성의 변화를 더하는 방법으로 수행하였다. 먼저 해석모델을 GaN와 InN 박막의 SAG성장과정에 대해 적용하여 성장율을 예측하였으며 이를 실험결과와 비교하여 해석모델의 타당성을 확인하였다. 삼각형 스트라이프 위에서 성장하는 InGaN 박막에 대해 해석한 결과 표면확산을 고려한 경우가 고려하지 않은 경우보다 In 조성이 약간 높아졌으며 그에 따라 방출되는 빛의 파장도 길어지는 것으로 나타났다. 마스크의 폭이 클수록 기상에서의 높은 농도로 인해 In의 조성도 증가하는 것으로 나타났으나 일정 크기 이상의 마스크에서는 더 이상 증가하지 않는 것으로 예측되었다. 성장영역이 2.0 μm 에서 0.4 μm 로 좁아진 경우 마스크 폭의 영향이 더욱 잘 나타나서 조성 증가의 폭이 커졌으며 그에 따른 파장도 더욱 길게 나타났다.

참고문헌

1. Yu, H., Lee, L. K., Jung, T., Ku, P. C., "Photoluminescence study of semipolar $\{10\bar{1}1\}$ InGaN/GaN multiple quantum wells grown by selective area epitaxy," *Applied Physics Letters* Vol. 90, 141906, 2007.
2. Fang, H., Yang, Z. J., Yang, Y., Dai, T., Sang, L. W., Zhao, L. B., Yu, T. J., Zhang, G. Y., "Analysis of mass transport mechanism in InGaN epitaxy on ridge shaped selective area growth GaN by metal organic chemical vapor deposition," *J. of Applied Physics*, Vol. 103, 014908, 2008.
3. Gibbon, M., Stagg, J. P., Cureton, C. G., Thrush, E. J., Jones, C. J., Mallard, R. E., Pritchard, R. E., Collis, N., Chew, A., "Selective-area low-pressure MOCVD of GaInAsP and related materials on planar InP substrates," *Semicond. Sci. Technol.* Vol. 8, pp. 998-1010, 1993.
4. Jones, A. M., Osowski, M. L., Lammert, R. M., Dantzig, J. A., Coleman, J. J., "Growth, characterization and modeling of ternary InGaAs-GaAs quantum wells by selective-area metalorganic chemical vapor deposition," *J. of Electronic Materials*, Vol. 24, No. 11, pp. 1631-1636, 1995.
5. Shioda, T., Sugiyama, M., Shimogaki, Y., Nakano, Y., "Kinetic analysis of InN selective area metal-organic vapor phase epitaxy," *Applied Physics Express* Vol. 1, 071102, 2008.
6. Shioda, T., Sugiyama, M., Shimogaki, Y., Nakano, Y., "Selective area metal-organic vapor phase epitaxy of InN, GaN and InGaN covering whole composition range," *J. of Crystal Growth*, Vol. 311, pp. 2809-2812, 2009.
7. Shioda, T., Tomita, Y., Sugiyama, M., Shimogaki, Y., Nakano, Y., "Selective area metal-organic vapor phase epitaxy of nitride semiconductors for multi-color emission," *IEEE J. of Selected Topics in Quantum Electronics*, Vol. 15, No. 4, pp. 1053-1065, 2009.
8. Greenspan, J. E., Zhang, X., Puetz, N., Emmerstorfer, B., "Growth mechanisms and modeling for metalorganic chemical vapor deposition selective-area epitaxy on InP substrates," *J. of Vacuum Science and Technology A*, Vol. 18 No. 2, pp. 648-651, 2000.
9. Ueda, M., Hayashi, K., Kondou, T., Funato, M., Kawakami, Y., Narukawa, Y., Mukai, T., "Mechanisms of metalorganic vapor phase epitaxy of InGaN quantum wells on GaN microfacet structures," *Phys. Stat. Sol. Vol. (c)4*, No. 7 pp. 2826-2829, 2007.
10. Greenspan, J. E., Blaauw, C., Emmerstorfer, B., Glew, R. W., Shih, I., "Analysis of a time-dependent supply mechanism in selective area growth by MOCVD," *J. of Crystal Growth*, Vol. 248, pp. 405-410, 2003.
11. Shioda, T., Sugiyama, M., Shimogaki, Y., Nakano, Y., "Vapor phase diffusion and surface diffusion combined model for InGaAsP selective area metal-organic vapor phase epitaxy," *J. of Crystal Growth*, Vol. 298, pp. 37-40, 2007.
12. Sekiguchi, H., Kishino, K., Kikuchi, A., "Emission color control from blue to red with nanocolumn diameter of InGaN/GaN nanocolumn array grown on same substrate," *Applied Physics Letters* Vol. 96, 231104, 2010.

접수일: 2011년 8월 8일, 심사일: 2011년 8월 30일,
게재확정일: 2011년 9월 15일