

HVPE growth of GaN/InGaN heterostructure on r-plane sapphire substrate

H. S. Jeon, S. L. Hwang, K. H. Kim, K. S. Jang, C. H. Lee, M. Yang, H. S. Ahn[†], S. W. Kim*, S. H. Jang**, S. M. Lee**, G. H. Park** and M. Koike**

Department of Applied Sciences, Korea Maritime University, Busan 606-791, Korea

**Department of Physics, Andong National University, Andong 760-749, Korea*

***Samsung Electro-Mechanics Co., Ltd, Suwon, Gyunggi-Do 443-743, Korea*

(Received November 3, 2006)

(Accepted December 4, 2006)

Abstract The a-plane GaN layer on r-plane Al₂O₃ substrate is grown by mixed-source hydride vapor phase epitaxy (HVPE). The GaN/InGaN heterostructure is performed by selective area growth (SAG) method. The heterostructure consists of a GaN layer, an InGaN layer and a Mg-doped GaN layer. NH₃ and gallium (or indium) chloride formed by HCl which is flown over mixed-source are used as gallium (or indium) and nitrogen sources. The gas flow rates of HCl and NH₃ are maintained at 10 sccm and 500 sccm, respectively. The temperature of GaN source zone is 650°C. In case of InGaN, the temperature of source zone is 900°C. The growth temperatures of GaN and InGaN layers are 820°C and 850°C, respectively. The EL (electroluminescence) peak of GaN/InGaN heterostructure is at nearly 460 nm and the FWHM (full width at half maximum) is 0.67 eV. These results are demonstrated that the heterostructure of III-nitrides on r-plane sapphire can be successfully grown by mixed-source HVPE with multi-sliding boat system.

Key words HVPE, R-plane sapphire, Heterostructure, a-plane GaN, Multi-sliding boat, Mixed-source

R-plane 사파이어 기판위의 GaN/InGaN 이중접합구조의 HVPE 성장

전헌수, 황선령, 김경화, 장근숙, 이충현, 양민, 안형수[†], 김석환*, 장성환**, 이수민**, 박길한**, M. Koike**

한국해양대학교 반도체물리학과, 부산, 606-791

*안동대학교 물리학과, 안동, 760-749

**삼성전기, 수원, 443-743

(2006년 11월 3일 접수)

(2006년 12월 4일 심사완료)

요 약 R-plane 사파이어 위에 a-plane GaN층이 성장된 기판에 혼합소스 HVPE(mixed-source hydride vapor phase epitaxy) 방법으로 GaN/InGaN의 이중접합구조(heterostructure)를 구현하였다. GaN/InGaN 이중접합구조의 성장은 선택성장(SAG : selective area growth) 방법을 사용하였다. GaN/InGaN 이중접합구조는 GaN, InGaN, Mg-doped GaN 층으로 구성되어 있다. 각 층의 성장온도는 GaN층은 820°C, InGaN 층은 850°C, Mg-doped GaN 층은 1050°C에서 성장하였다. 이때의 NH₃와 HCl 가스의 유량은 각각 500 sccm, 10 sccm 이었다. SAG-GaN/InGaN 이중접합구조의 상온 EL(electroluminescence) 특성은 중심파장은 462 nm, 반치폭(FWHM : full width at half maximum) 은 0.67 eV 이었다. 이 결과로부터 r-plane 사파이어 기판위에 multi-sliding boat system의 혼합소스 HVPE 방법으로 이중접합구조의 성장이 가능함을 확인하였다.

1. 서 론

최근 청색 영역과 녹색 영역 그리고 이들 소스를 활용한 백색 및 UV(ultra violet) 영역의 광소자 및 전자소자에 관한 연구는 III-V족 질화물 반도체의 다양한 성장 방법과 저온 버퍼층 제어기술 등을 이용하여 눈부신 발

전이 이루어지고 있다[1-4]. III-V족 질화물 반도체는 직접 천이형의 넓은 띠 간격의 특성을 지니고 있어 광소자와 고온·고출력 전자소자, 고이동도 트랜지스터(HEMT : high electron-mobility transistor) 등 응용분야가 매우 다양하다[5, 6]. 이런 이유로 이들 재료와 함께 형광체를 이용한 백색 LED가 형광등을 대신하여 21 세기의 조명 광원으로 주목받고 있다.

III-V족 wurtzite 구조의 화합물 반도체에 있어서 분극은 광소자에 많이 사용되고 있는 이중접합구조에 매우 큰 영향을 미친다. 분극은 고정전하와 결합하여 내부의

[†]Corresponding author

Tel: +82-51-410-4781

Fax: +82-51-404-3986

E-mail: ahnhs@mail.hhu.ac.kr

전계를 증가시켜 양자우물 구조의 광소자에 있어서 전자와 정공이 분리하는 원인이 된다. 이러한 분리는 발광수명의 손실을 증가시킨다[7]. 이런 문제의 해결책으로 이종접합구조에서 전계에 의한 분극의 발생으로부터 영향을 받지 않는 m-plane[1-100] 또는 a-plane[11-20] 방향의 GaN 성장이 최근 많이 연구되고 있으며 특히 LiAlO₂(100) 기판에 MOCVD(metalorganic chemical vapor deposition) 방법으로 m-plane GaN의 성장과 r-plane 사파이어 기판에 MOCVD와 HVPE 방법으로 a-plane GaN 성장이 보고되고 있다[8-13].

본 논문에서는 r-plane 사파이어 기판에 평탄한 a-plane GaN 층을 성장하고 GaN/InGaN 이종접합구조를 성장하였다. 성장방법은 Ga 소스에 In, Mg 등의 금속을 직접 녹여 HCl과 반응시키는 혼합소스 HVPE 방법을 이용하였다[14]. 또한 GaN/InGaN의 이종접합구조는 선택성장법을 이용하여 형성하였으며 특성은 전극형성 과정을 거친 후 EL(electroluminescence) 측정을 통하여 평가하였다.

2. 실험

Fig. 1은 GaN/InGaN의 이종접합구조를 성장하기 위한 multi-sliding boat system의 구조를 보여준다. Multi-sliding boat는 top plate와 well로 구성되며 HCl inlet quartz tube는 top plate의 well이 열려있는 앞 단에 고정되어 HCl이 금속 Ga에 접촉하도록 구성하였다. 각 층의 성장은 boat의 뚜껑에 부착된 HCl관을 이동시켜 well의 개폐를 조절한다. 열려진 well 안의 혼합소스와 HCl은 화학반응을 하고 나머지 well들은 뚜껑으로 완전히 덮여있어 다른 well의 혼합소스에 의한 영향은 차단되도록 고안하였다. 이러한 multi-sliding boat는 상압이 유지되는 수평형 반응관에서 혼합소스 HVPE 방법으로 성장되었다.

본 논문에서 고안된 multi-sliding boat system은 일반적으로 GaN 결정 성장시의 성장률에 비해 10배 정도 작은 0.5 μm/min 정도의 성장률을 가지는 것이 특징이다. 이는 HCl이 금속 Ga에 접촉하는 비율을 최소화하여 얇은 층 혹은 이종접합구조를 성장하기 위해서 고안되었

다. GaN/InGaN의 이종접합구조를 성장하기 위해서는 In 혼합물과 p형 도펀트가 함유된 혼합물이 필요하며 본 논문에서는 Ga 소스에 금속을 직접 녹이는 방법인 혼합소스 방법을 이용하였다. 이렇게 녹인 소스를 multi-sliding boat system의 각각의 well에 녹여 GaN/InGaN 이종접합구조의 각 층을 성장하였다. 각각의 well은 소스가 서로 섞이지 않도록 칸막이로 완전히 분리되었다. Multi-sliding boat의 두번째 well은 활성층 성장을 위한 (Ga+In) 혼합소스, 세번째 well은 (Ga+Mg) 혼합소스를 넣어 p-GaN 층을 성장하였다. 금속 Ga와 NH₃가 precursor로 사용되었고 캐리어 가스로 N₂를 사용하였다. A-plane GaN 층은 r-plane 사파이어 기판 위에 성장하였다. HCl 가스의 pre-flow 과정을 거친 후 820°C에서 3분간 GaN를 성장시켰다. 성장시 HCl의 유량은 10 sccm으로 하였다. 이종접합구조를 형성하기 위하여 선택성장(SAG : selective area growth) 방법을 이용하였다. 선택 성장을 위하여 RF sputter로 SiO₂ 막을 약 5000 Å 정도의 두께로 증착시켰다. SAG 방법은 SiO₂ 막이 기판으로부터의 전위확산을 차단하여 낮은 전위밀도를 갖는 결정 성장이 가능하고, 건식 에칭에 비하여 위험성 및 오염이 적은 장점이 있다. EL 측정을 위한 전극구조는 SiO₂ 마스크 위에 일반적인 포토공정과 습식에칭 공정으로 형성하였다. 활성층인 InGaN의 선택성장을 위하여 두번째 well(In+Ga)을 열어 850°C에서 성장하였고, 마지막 p-GaN 층의 성장을 위하여 세번째 well(Ga+Mg)을 열어 1050°C에서 성장하였다 이때의 HCl 유량은 각각 10 sccm으로 하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 r-plane 사파이어 기판 위에 형성되는 a-plane GaN의 결정 구조도를 보여주고 있다. 육방정계(hexagonal)의 구조를 가지는 사파이어 기판은 c-plane, r-plane, m-plane 그리고 a-plane 사파이어 결정 표면을 갖는 기판을 형성할 수 있다. C-plane 사파이어 기판위에 GaN와 같은 결정을 성장할 경우 분극이 발생하여 계면에서 전기장을 발생시킨다. 따라서 이러한 특성이 거의 나타나지 않는 결정표면을 가지는 사파이어 기판을 이용함으로써 문제점을 해결할 수 있게 된다. Fig. 2에서와 같이 r-plane 사파이어 기판 위에 성장되는 a-plane GaN 결정은 육방정계가 옆으로 누인 형태의 모양을 하고 있다. 따라서 육방정계의 누인 모양을 적층하면 평탄한 면의 형성이 힘들다는 것을 알 수 있다.

Fig. 3은 r-plane 사파이어 기판 위에 성장한 a-plane GaN 표면 SEM 사진을 나타내었다. 그림에서와 같이 r-plane 사파이어 위에 성장된 a-plane GaN는 원자의 결

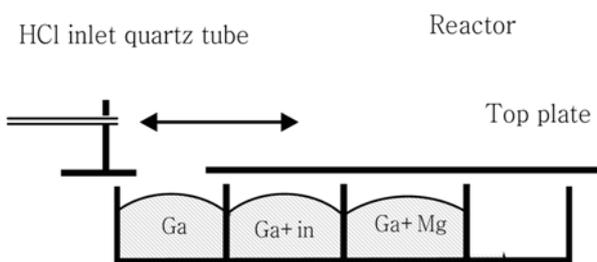


Fig. 1. The mixed-source HVPE with multi-sliding boat system.

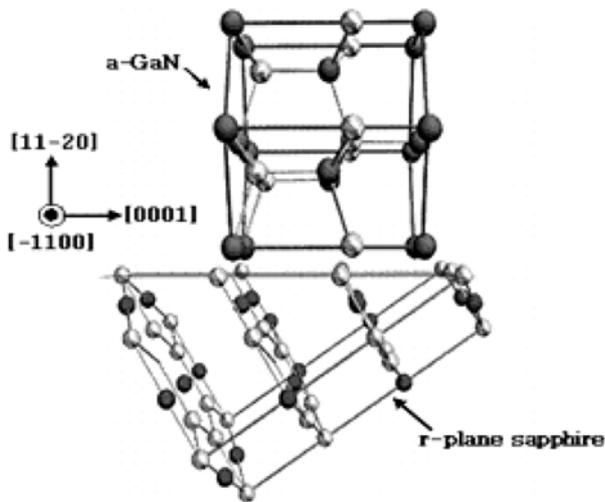


Fig. 2. Schematic image of a-plane GaN layer on r-plane sapphire substrate.

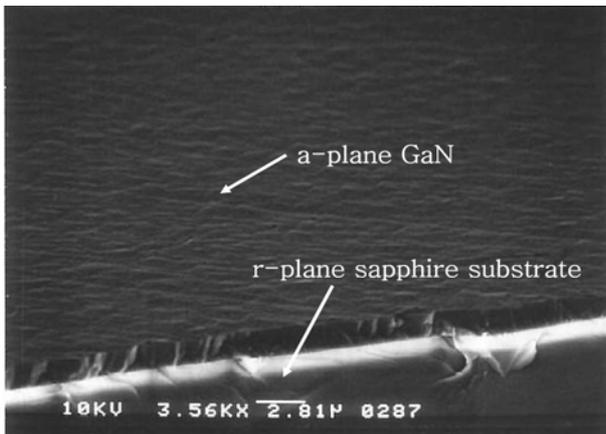


Fig. 3. Surface of a-plane GaN layer on r-plane sapphire substrate grown by mixed-source HVPE.

함 배치에 의해 표면이 고르지 않는 성장특성으로 인하여 기판의 방향에 대하여 물결무늬 형태의 표면층이 나타나게 된다. 이러한 현상을 줄이고 평탄한 표면을 얻기 위해서는 성장온도 변화, HCl 유량 변화 등의 성장조건이 요구되며 본 논문에서는 Fig. 3에서 볼 수 있듯이 이종접합구조를 형성할 수 있는 평탄한 a-GaN 표면을 얻을 수 있었다. 이때 a-plane GaN층의 두께는 1.4 μm 정도였다.

Fig. 4는 EL 측정을 위한 GaN/InGaN 이종접합구조의 개략도이다. 투명한 금속의 ohmic 형성을 위하여 p-GaN의 표면에 e-beam 증착기를 이용하여 Ni/Au를 각각 35/35 Å를 증착한 후 O_2 분위기에서 열처리하였다. 그 위에 다시 p-전극의 형성을 위하여 Ni/Au를 각각 150/500 Å 증착하였다. 그 후 n-전극형성을 위하여 이종접합구조를 성장한 뒤 SiO_2 를 제거하고 드러난 n-GaN 층 위에 Ti/Al을 각각 500/500 Å 증착하였다. 이 시료는 600°C로

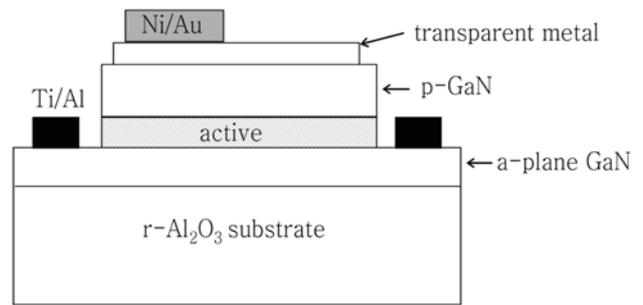


Fig. 4. The schematic structure of the SAG-GaN/InGaN heterostructure.

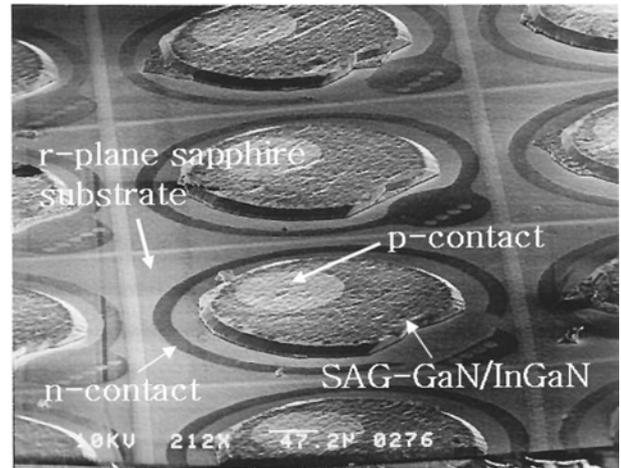


Fig. 5. Top-view image of SAG-GaN/InGaN heterostructure grown by the mixed-source HVPE with multi-sliding boat system.

N_2 분위기에서 열처리하였다. GaN/InGaN 이종접합구조의 특성은 상온 EL을 통하여 평가하였다.

Fig. 5는 multi-sliding boat를 이용하여 r-plane 사파이어 기판 위에 혼합소스 HVPE 방법으로 성장시킨 GaN/InGaN 이종접합구조의 SEM 사진을 나타내었다. 이종접합구조 패턴 하나의 크기는 350 $\mu\text{m} \times 350 \mu\text{m}$ 이다. Window 영역 지름은 200 μm 이고 p-pad 전극의 지름은 100 μm 이다. N 층의 전류 확산을 원활히 하기 위하여 원형 고리형태의 전극모양을 이용하였다.

선택성장된 InGaN의 활성층과 Mg-doped GaN층 전체 두께는 7.8 μm 정도임을 확인할 수 있었다. Fig. 5에서 볼 수 있듯이 SiO_2 마스크 막과 선택 성장된 이종접합구조가 아주 잘 분리되어 있음을 확인할 수 있다. 첫번째 층인 a-plane GaN 층은 최소한의 평탄한 형태의 이종접합구조를 얻기 위하여 도핑에 의한 영향을 최소화한 undoped-GaN로 성장하였다. 활성층의 In 조성은 10~20% 정도의 범위에서 조절하였다. 또한 Mg-doped GaN는 $1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 정도의 도핑 농도가 측정되었다.

GaN/InGaN 이종접합구조의 EL 특성은 Fig. 6에 나타

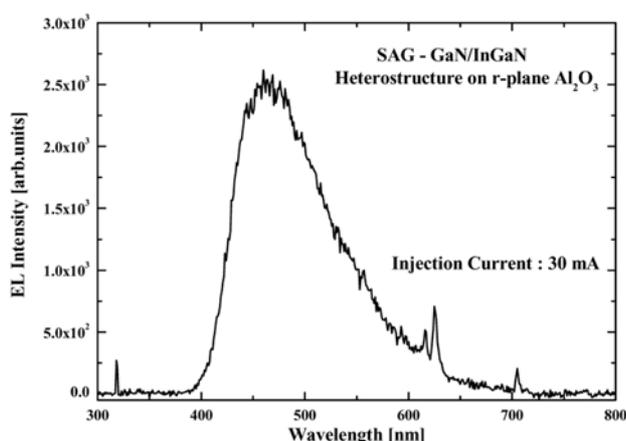


Fig. 6. EL spectrum of the SAG-GaN/InGaN heterostructure on r-plane sapphire substrate.

내었다. 상온에서 30 mA의 주입 전류를 통해 EL을 측정하였으며, SAG-GaN/InGaN 이중접합구조의 중심파장은 462 nm 이며 반치폭(FWHM : full width at half maximum)은 0.67 eV임을 알 수 있었다. InGaN 활성층의 In 조성비는 Vegard 법칙을 이용하여 계산하였다 [15]. Bowing parameter는 1.43 eV로 하고 InGaN의 밴드갭은 0.7 eV로 계산한 결과 In의 조성비는 18 %로 평가되었다. 위의 결과는 일반적인 이중접합구조의 특성에 비하여 좋은 결과는 아니지만, 성장조건, 구조설계 및 공정조건의 개선 등에 의해 좁은 반치폭 및 높은 휘도를 가지는 SAG-GaN/InGaN 이중접합구조의 특성을 얻을 수 있으리라 기대된다.

4. 결 론

분극의 영향을 받지 않는 r-plane 사파이어 기판 위에 multi-sliding boat system을 이용한 혼합소스 HVPE 방법으로 SAG-GaN/InGaN 이중접합구조를 성장하였다. SAG-GaN/InGaN 이중접합의 구조는 GaN, InGaN 활성층, Mg-doped GaN 층으로 구성되었다. SAG-GaN/InGaN 이중접합의 EL peak는 주입전류가 30 mA일 때 중심파장이 462 nm 근처에서 측정되었고 반치폭은 0.67 eV이다. SAG-GaN/InGaN 이중접합구조의 특성은 성장조건과 디자인의 최적화가 이루어진다면 좁은 반치폭과 높은 휘도를 가지는 EL특성을 지닌 이중접합구조의 성장이 가능할 것으로 기대한다.

감사의 글

This work was supported by the Korea Research

Foundation Grant funded by the Korean Government (MOEHRD, Basic Research Promotion Fund) (KRF-2006-521-D00285).

참 고 문 헌

- [1] M.M. Wong, J.C. Denyszyn, C.J. Collins, U. Chowdhury, T.G. Zhu, K.S. Kim and R.D. Dupuis, "AlGaIn/AlGaIn double-heterojunction ultraviolet light-emitting diodes grown by metal organic chemical vapour deposition", *Electron. Lett.* 37 (2001) 1188.
- [2] A. Kinoshita, H. Hirayama, M. Aino, Y. Aoyagi and A. Hirata, "Room-temperature operation at 333 nm of Al_{0.03}Ga_{0.97}N/Al_{0.25}Ga_{0.75}N quantum-well light-emitting diodes with Mg-doped superlattice layers", *Appl. Phys. Lett.* 77 (2000) 175.
- [3] T. Nishida, H. Saito and N. Kobayashi, "Efficient and high-power AlGaIn-based ultraviolet light-emitting diode grown on bulk GaN", *Appl. Phys. Lett.* 79 (2001) 711.
- [4] T.G. Zhu, J.C. Denyszyn, U. Chowdhury, U. Chowdhury, M.M. Wong and R.D. Dupuis, "AlGaIn-GaN UV light-emitting diodes grown on SiC by metal-organic chemical vapor deposition", *IEEE J. Sele. Topic. Quant. Electron.* 8 (2002) 298.
- [5] Y.J. Yu, M.Y. Ryu, P.W. Yu, D.J. Kim and S.J. Park, "Optical investigation of InGaIn/GaN quantum well structures with various barrier widths", *J. Korean Phys. Soc.* 28 (2001) 134.
- [6] H.M. Kim, J.S. Choi, J.E. Oh and T.K. Yoo, "Cathodoluminescence characterization of GaN thick films grown by using the HVPE method", *J. Korean Phys. Soc.* 37 (2000) 956.
- [7] R. Langer, J. Simon, V. Ortiz, N. T. Pelekanos, A. Barski, R. Andre and M. Godlewski, "Giant electric fields in unstrained GaN single quantum wells", *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999) 3827.
- [8] M.D. Craven, S.H. Lim, F. Wu, J.S. Speck and S.P. DenBaars, "Structural characterization of nonpolar (11-20) a-plane GaN thin films grown on (1-102) r-plane sapphire", *Appl. Phys. Lett.* 81 (2002) 469.
- [9] H.M. Ng, "Molecular-beam epitaxy of GaN/Al_xGa_{1-x}N multiple quantum wells on R-plane (10-12) sapphire substrates", *Appl. Phys. Lett.* 80 (2002) 4369.
- [10] B.A. Haskell, F. Wu, S. Matsuda, M.D. Craven, P.T. Fini, S.P. Denbarrs, J.S. Speck and S. Nakamura, "Structural and morphological characteristics of planar (11-20) a-plane gallium nitride grown by hydride vapor phase epitaxy", *Appl. Phys. Lett.* 83 (2003) 1554.
- [11] K. Xu, J. Xu, P.Z. Deng, R.S. Qui and Z.J. Fang, "MOCVD growth of GaN on LiAlO₂ (100) substrates", *Phys. Status Solidi A* 176 (1999) 589.
- [12] H.M. Wang, C.Q. Chen, Z. Gong, J.P. Zhang, M. Gaevski, M. Su, J.W. Yang and M.A. Khan, "Anisotropic structural characteristics of (11-20) GaN templates and coalesced epitaxial lateral overgrown films deposited on (10-12) sapphire", *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004) 499.

- [13] T. Paskova, V. Darakchieva, P.P. Paskov, J. Birch, E. Valcheva, P.O.A. Pearson, B. Arnaudov, S. Tungasmita and B. Monemar, "Properties of nonpolar a -plane GaN films grown by HVPE with AlN buffers", *J. Cryst. Growth* 281 (2005) 55.
- [14] H.S. Ahn, K.H. Kim, M. Yang, J.Y. Yi, H.J. Lee, C.R. Cho, H.K. Cho, S.W. Kim, T. Narita, Y. Honda, M. Yamaguchi and N. Sawaki, "Growth of thick Al_{0.5}Ga_{0.5}N by mixed-source hydride vapor phase epitaxy", *Appl. Surf. Sci.* 243 (2005) 178.
- [15] K.P. O'Donnell, I. Fernandez-Torrente, P.R. Edwards and R.W. Martin, "The composition dependence of the In_xGa_{1-x}N bandgap", *J. Cryst. Growth* 269 (2004) 100.