

나노구조를 응용한 AlN 성장 방법 및 특성

손호기¹, 김진원¹, 임태영¹, 이미재¹, 김진호¹, 전대우^{1,a}, 황종희¹, 오해곤²,
 최영준², 이해용²

¹ 한국세라믹기술원

² 루미지엔테크

High Quality AlN Layer Regrown on AlN Nanostructure by Hydride Vapor Phase Epitaxy

Hoki Son¹, Jinwon Gim¹, Tea-Young Lim¹, Mijai Lee¹, Jin-Ho Kim¹, Dae-Woo Jeon^{1,a}, Jonghee Hwang¹,
 and Hae-Kon Oh², YoungJun Choi², and Hae-Yong Lee²

¹ Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Jinju 52851, Korea

² LumiGNtech Co., SK Techno Park, Gwangmyeong 14322, Korea

(Received October 19, 2015; Revised October 24, 2015; Accepted October 24, 2015)

Abstract: In this paper, high quality AlN layers were regrown on AlN nanopillar structure with SiO₂-dots by HVPE. Surface morphology of AlN layer regrown exhibited flatter than a conventional AlN template. The laterally overgrown AlN regions would consist of a continuous well coalesced layer with lower dislocation density than in the template because of the dislocation blocking and dislocation bending effects. Moreover, result of Raman spectroscopy suggest that the AlN nanopillar structure with SiO₂-dots relieves the strain in the AlN layer regrown by HVPE.

Keywords: AlN, Nano structure, HVPE, Refractive index

1. 서 론

알루미늄 나이트라이드 (aluminum nitride, AlN) 막은 6.2 eV의 밴드갭 에너지, 3.2 W cm⁻¹K⁻¹의 높은 열전도도, 그리고 GaN과 격자상수 차이가 작기 때문에 AlGaIn 기반의 UV-LED, 고출력, 고온 작동 전자소자에 용이하다 [1]. 특히 210 nm 이상의 단파장에서 높은 투과 특성으로 DUV-LED와 레이저 다이오드에

적합한 재료이다 [2]. 고효율의 AlGaIn 기반 광소자를 구현해 내기 위해 낮은 관통 전위밀도를 갖는 AlN template 개발은 필수적이다. GaN과 사파이어 기판 사이의 격자상수 차이로 인해 발생하는 관통전위 등의 결정 결함을 줄이기 위한 방법으로 측면성장 (epitaxial lateral overgrowth, ELO) 기법이 다양하게 활용되고 있다 [2]. 또한, patterned 사파이어 기판을 이용한 실험도 많이 알려져 있다 [3].

두꺼운 AlN 막을 성장하기 위한 방법으로는 HVPE (hydride vapor phase epitaxy)가 대표적이다. HVPE 방법은 높은 성장률과 낮은 불순물 함량 등에 있어서 장점을 가진다 [4]. 고품질의 AlN 막을 성장하기 위해서는 고온성장이 이루어져야 하지만 고온성장은 기판

a. Corresponding author; dwjeon@kicet.re.kr

과의 열팽창계수 차이로 냉각할 때 균열이 발생하게 된다 [5]. 이러한 점을 극복하기 위해서 본 연구에서는 고품질의 AlN 막을 성장하기 위해서 HVPE 방법으로 AlN nanopillar/SiO₂ 구조를 적용하고 AlN 막을 재성장하여 그 특성을 평가하였다.

2. 실험 방법

그림 1은 AlN 나노구조 제작부터 AlN 막 재성장까지의 모식도이다. 먼저, AlN template는 수평형 HVPE에서 상압, 성장온도 1,140°C에서 (0001) 사파이어 기판 위에 약 1 ~ 2 μm 성장하였다. 그 다음, 나노구조를 형성하기 위해서 SiO₂를 AlN template 위에 plasma-enhanced chemical vapor deposition을 이용하여 증착하였다. 그 후에 Ni 금속을 e-beam evaporator를 이용하여 SiO₂ 위에 다시 증착하고 증착된 Ni 박막은 nano-dot를 형성하기 위해 고온 질소 분위기에서 열처리를 진행하였다. Ni nano-dot과 SiO₂층은 AlN 층을 건식식각 시에 mask 역할을 하여 nanopillar를 형성하게 한다. 건식식각으로 AlN 박막을 나노구조로 만들고, HCl 용액으로 Ni dot을 선택적으로 제거하여 나노구조 상단부에 SiO₂ dot이 존재하는 구조의 기판을 제작 후 HVPE를 이용하여 제작된 나노구조 기판 위에 AlN 막을 재성장 하였다.

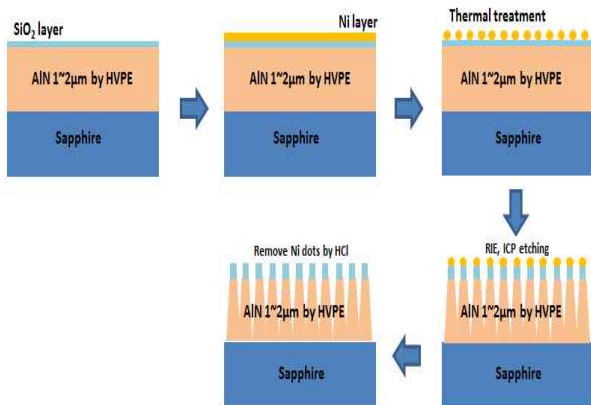


Fig. 1. Schematic diagram of the formation of AlN nanostructure on sapphire substrate.

성장된 AlN 막과 나노구조의 형상을 알아보기 위해 FE-SEM, OM (Reichert, Reicher Polyvar SC, Aust

ria)을 사용하였고 표면 roughness를 확인하기 위해 AFM (SPA 500, Seiko, Japan)을 이용하였다. 성장된 AlN 막의 결정성 및 응력을 분포를 확인하기 위해 HR-XRD (JSPM-5200, Panalytical, Netherland), Raman (NRS 3100, Jasco, Japan)을 이용하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 FE-SEM으로 나노구조를 형성하기 위해 건식식각 후에 측정된 AlN nanopillar/SiO₂ 기판의 이미지이다. 비교적 균일한 모습의 nanopillar를 관찰할 수 있었다. 평균 크기는 100~200 nm이고, 높이는 약 1.5 μm 이었다. 그리고 nanopillar의 끝부분에는 Ni dot과 SiO₂ dot을 확인할 수 있었다.

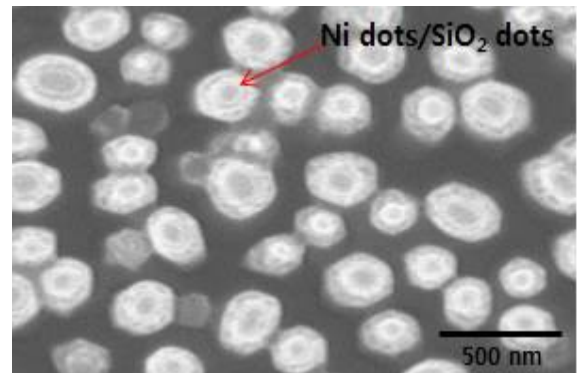


Fig. 2. SEM image of AlN nanopillar/SiO₂ template before regrowth.

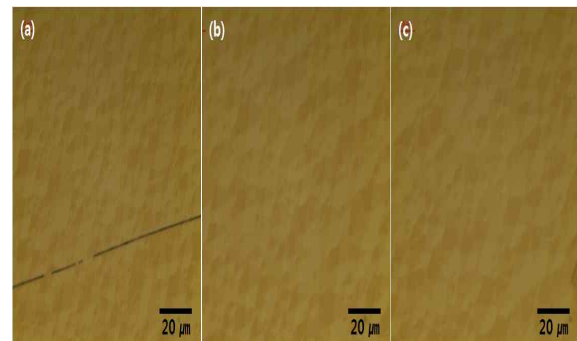


Fig. 3. Normal-scan images of surface of AlN regrown sample, (a) AlN on sapphire, (b) AlN on nanopillar, and (c) AlN on AlN nanopillar/SiO₂.

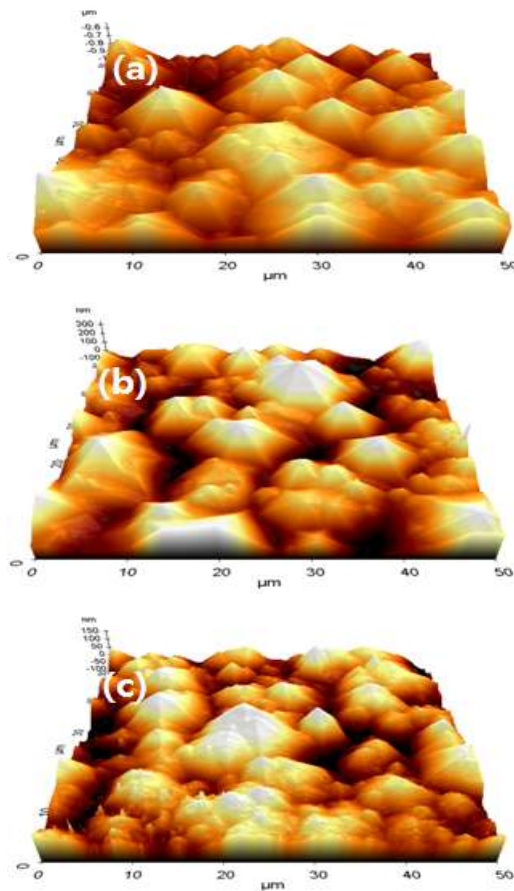


Fig. 4. Tilted AFM image of each AlN samples after regrowth, (a) AlN on sapphire, (b) AlN on AlN nanopillar, and (c) AlN on AlN nanopillar/SiO₂.

그림 3은 각기 다른 구조를 가지는 샘플 위에 재성장된 AlN 막의 표면을 관찰한 Normalski 이미지이다.

모든 표면에서는 수많은 hillock이 관찰되었다. 균열은 AlN /sapphire template 위에 재성장한 그림 3(a)에서 선명하게 나타났다. 반면에 AlN nanopillar 위에 재성장한 그림 3(b)와 AlN nanopillar/SiO₂ 위에 재성장한 그림 3(c)에서는 표면에 균열이 없이 성장되었음을 확인할 수 있었다. 이는 AlN nanopillar 구조를 적용하여 재성장 하는 방법이 표면 균열 형성을 억제하는데 효과적인 것으로 판단된다.

그림 4는 각각의 성장된 AlN 막의 표면 AFM 이미지이다. 각각의 샘플의 RMS roughness 값은 75.9 nm, 60.3 nm, 31.2 nm이다. AlN nanopillar 위에 재성장한 AlN 막의 표면이 개선되는 것을 볼 수 있었

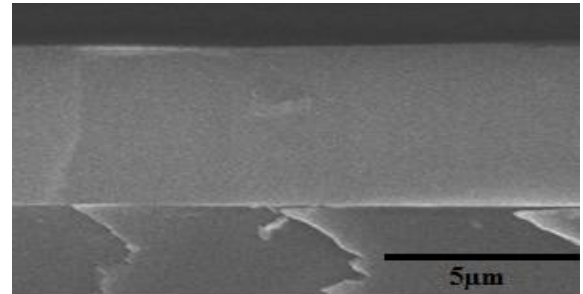


Fig. 5. Cross-section FE-SEM image of AlN nanopillars/SiO₂ after regrowth.

Table 1. FWHM values of XRC and Raman E₂(high) peak of each regrown AlN samples.

Substrate	XRC(002)	XRC(102)	Raman E ₂ (high)
AlN template	386 arcsec	576 arcsec	656.64 /cm ⁻²
AlN nanopillar	295 arcsec	396 arcsec	657.64 /cm ⁻²
AlN nanopillar/SiO ₂	265 arcsec	318 arcsec	657.40 /cm ⁻²

다. 또한, AlN nanopillar/SiO₂ 구조 위에 성장된 AlN 막의 특성은 나노구조가 적용되지 않은 AlN 막과 비교 시에 RMS roughness 값이 2배 정도 향상된 것을 확인할 수 있었다. ELO에서 lateral growth가 강화되면 평평한 표면이 아닌 hillock이 많은 표면이 나타난다 [3]. SiO₂-dot은 과도한 lateral growth를 막아주어 상대적으로 flat한 표면 특성을 보인다.

그림 5는 재성장된 AlN 막을 FE-SEM으로 단면 측정된 이미지이다. 재성장된 AlN막은 큰 무리 없이 merge된 결과를 보였다. 앞서 보고된 선행 연구에서는 성장률을 조절하여 nanopillar 사이에 air void를 형성한 결과가 보고되었다 [3]. 그러나, 본 연구에서는 AlN 층 사이에 air void에 형성 없이 nanopillar의 상단에 SiO₂를 남겨두어 전위 밀도의 감소 효과를 확인하려고 하였다.

표 1은 각 샘플에 대한 HR-XRC (High Resolution X-ray Rocking Curve) 측정 결과에 따른 FWHM (002), (102)와 Raman spectroscopy 측정에 따른 E₂ (high)값을 나타내었다. 먼저, 재성장된 AlN 막의 결정성을 나타내는 FWHM은 AlN nanopillar/SiO₂ 위에

재성장된 AlN 막에서 가장 우수한 특성을 보였다. 하지만 SiO₂-dot이 존재하지 않는 AlN nanopillar 구조에 의해서도 재성장 시에 결정성이 향상되었음을 확인하였다. 이는 재성장 시에 AlN nanopillar의 측면에서도 재성장이 동시에 일어나면서 dislocation bending에 의해 전위 밀도의 감소 효과로 판단된다.

또한, AlN nanopillar/SiO₂ dot에 의해 약 10% 정도의 결정성이 향상된 것을 확인할 수 있었다. SiO₂ dot은 AlN nanopillar 상단에 위치하여 기판의 계면에서부터 형성된 전위의 진행경로를 차단하게 된다. 결과적으로 SiO₂ dot에 의해 전위 밀도 감소로 결정성이 향상된 결과로 보여진다.

선행 연구그룹에서 보고된 연구 결과에 의하면 Raman 측정 결과에서 AlN 막의 free-strain 상태에서의 E₂(high)의 값은 657.4/cm⁻²이다 [6].

표 1에서는 측정된 AlN 샘플 3개의 E₂(high)의 값이 656.64, 657.64, 657.40/cm⁻²로 각각 표시되어 있다. 이 중에서도 AlN nanopillar/SiO₂ 위에서 재성장된 AlN 막에 대한 측정값은 앞서 보고된 free-strain 상태에서의 값과 일치하므로 AlN template 상에 존재하던 인장응력이 효과적으로 제거된 것으로 판단된다. 이는 XRC 결과에서 보는 바와 같이 결정성 향상에 있어서 SiO₂-dot에 의한 전위 밀도의 감소뿐만 아니라 나노 구조적 특징에 의한 응력 감소의 원인도 작용했음을 의미한다.

4. 결 론

본 연구에서는 HVPE 장비를 이용하여 사파이어 기판에 성장된 AlN 막에 나노구조를 적용하여 재성장된 AlN 막의 특성을 확인할 수 있었다. AlN nanopillar 구조를 적용하여 성장된 AlN 막은 표면에서 균열 없이 성장이 가능하였고, 이 구조는 결정성을 향상시키는 것도 알 수 있었다. 또한 AlN nanopillar 위에 존재하는

SiO₂-dot은 전위의 진행을 막아서 전위 밀도의 감소에 의한 결정성 향상을 확인하였다. 결론적으로 AlN nanopillar/SiO₂-dot 구조가 결정성 향상 및 응력 감소에 효과적임을 나타내는 결과이다.

감사의 글

본 연구는 지식경제부의 전략적 핵심소재 기술개발 사업의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다. (과제번호:10043791)

REFERENCES

- [1] M. Balaji, A. Claudel, V. Fellmann, I. Gelard, E. Blanquet, R. Boichot, A. Pierret B. Attal-Tretout, A. Crisci, S. Coindeau, H. Roussel, D. Pique, K. Baskar, and M. Pons, *J. Alloys Comp.*, **526**, 103 (2012).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.02.111>]
- [2] K. Fujita, K. Okuura, H. Miyake, K. Hiramatsu, and H. Hirayama, *Phys. Status Solidi C*, **5**, 1483 (2011).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201001130>]
- [3] H. Hirayama, S. Fujikawa, J. Norimatsu, T. Takano, K. Tsubaki, and N. Kamata, *Phys. Status Solidi C*, **S5**, S356 (2009). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.200880958>]
- [4] T. Nagashima, M. Harada, H. Yanagi, H. Fukuyama, Y. Kumagai, A. Koukitu, and K. Takada, *J. Crystal Growth*, **305**, 355 (2007).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2007.04.001>]
- [5] Y. Kumagai, Y. Enatsu, M. Ishizuki, Y. Kubota, J. Tajima, T. Nagashima, H. Murakami, K. Takada, and A. Koukitu, *J. Crystal Growth*, **312**, 2530 (2010).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2010.04.008>]
- [6] V.Y.U. Davydov, Y.U.E. Kitaev, I. N. Goncharuk, A. N. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, D. Uffmann, M.B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, and R. A. Evarestov, *Phys. Rev. B* (American Physical Society, U. S., 1998) p. 12899.