

R-면 사파이어 기판 위에 플라즈마 분자선 에피탁시법을 이용한 산화아연 박막의 성장 및 특성평가

한석규, 홍순구, 이재욱*, 이정용*
 충남대학교 재료공학과, 한국과학기술원 신소재공학과*

Growth and characterization of ZnO thin films on r-plane sapphire substrates by plasma-assisted molecular beam epitaxy

Seok Kyu Han, Soon-Ku Hong, Jae Wook Lee, Jeong Yong Lee*

Department of Materials Science and Engineering, Chungnam National University, Korea Advanced Institute of Science and Technology*

Abstract : Single crystalline ZnO films were successfully grown on r-plane sapphire substrate by plasma-assisted molecular beam epitaxy. Epitaxial relationship between the ZnO film and the r-plane sapphire was determined to be $[-1101]Al_2O_3 \parallel [0001]ZnO$, $[11-20]Al_2O_3 \parallel [-1100]ZnO$ based on the in-situ RHEED analysis and confirmed again by HRXRD measurements. Grown (11-20) ZnO films showed faceted structure along the $\langle 0001 \rangle$ direction and the RMS roughness was about 4 nm.

Key Words : ZnO, MBE, r-plane Al_2O_3 , nonpolar substrate, polarization

1. 서론

II-VI족 반도체인 ZnO는 GaN와 마찬가지로 wurtzite 구조를 가지는 와이드밴드갭 반도체로서 ($E_g=3.37$ eV) 청색에서 자외선 영역의 빛을 내는 발광소자(Light Emitting Diodes, LEDs), 레이저 다이오드(Laser Diodes, LDs) 등의 응용으로 주목받고 있다. ZnO 박막은 대개 (0001) 사파이어나 6H-SiC에서 성장되는데 이 경우 c축방향으로 반전대칭의 결여로 박막은 극성을 가지며 [1], 이로 막내에는 변형에 의한 압전분극(piezoelectric polarization)과 더불어 결정 자체가 가지고 있는 고유한 자발분극(spontaneous polarization)이 존재하며 이러한 분극은 결국 막내에 전계(electrostatic field)를 형성하게 된다. 이와 같이 분극유발 전계는 양자우물의 에너지 밴드구조를 변화시켜 소자의 특성에 커다란 영향을 끼치게 된다. [2] 이러한 이유로 GaN계 광소자 연구는 (0001) 사파이어와 같은 극성기판을 탈피하여 (1-102) 사파이어와 같은 비극성기판을 사용하여 박막을 성장함으로써 극성에 의한 전계생성의 영향을 제거하고자 하는 연구가 많이 진행되어 새로운 결과들이 보고되고 있다. [3] 여기서 ZnO의 자발분극계수는 GaN의 2배에 가까운 큰 값을 가지며 [4] 이는 곧 ZnO의 경우 GaN에 비하여 분극에 의한 전계생성 및 이의 소자에 미치는 영향을 더 클 수 있다는 것을 의미한다. 비극성기판을 이용한 wurtzite 구조 와이드밴드갭 반도체 재료의 에피성장은 주로 GaN에 대한 연구가 주를 이룬다. 성장방법에 있어서는 주로 MOCVD이며 따라서 ZnO는 물론 GaN를 포함하여 wurtzite 구조 와이드밴드갭 반도체 재료의 비극성기판 위 MBE 성장에 대한 연구는 매우 미비한 상황이다.

본 논문에서는 비극성기판인 r-면 사파이어 기판위에 플라즈마 분자선 에피탁시 방법으로 ZnO를 에피박막으로

성장하였다. RHEED 를 이용하여 성장거동을 관찰하여 r-면 사파이어 기판위에 wurtzite 박막의 RHEED 패턴 분석을 처음으로 체계적으로 수행하였다. 이러한 RHEED 패턴 분석을 통하여 ZnO 박막과 r-면 사파이어 기판과의 에피방향관계를 규명하였으며 그 결과는 다양한 면에 대한 고분해능 X-선 회절분석으로 중복 확인하였다.

2. 실험

R-면 사파이어 기판, 즉 (1-102) Al_2O_3 기판의 세정은 (0001) 기판과 같은 일반적인 사파이어 기판의 일반적인 화학적 세정공정을 거쳐 준비하였으며 중간챔버와 성장챔버에서 열처리세정 공정을 하였다. 기판의 세정 상태 및 ZnO 박막 성장 거동은 in-situ RHEED를 이용하여 관찰하였으며 RF 산소 플라즈마와 고체 Zn 소스를 사용하여 성장한 ZnO 박막은 HRXRD, AFM을 이용하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1의 (a)는 ZnO 박막 성장 바로전의 r-면 사파이어 기판과 ZnO 박막 성장후의 RHEED 패턴이다. 우선 RHEED 패턴으로부터 ZnO 박막이 단결정으로 성장되었음을 알 수 있다. 사용한 RHEED 전자총에서 방출되는 전자 파장, RHEED geometry, 가능한 연간거리 등을 종합적으로 고려하여 RHEED 패턴을 분석한 결과 그림 1의 각 패턴은 사진에 표시한 것과 같은 azimuth를 가짐을 알 수 있었고, 이로부터 r-면 사파이어 기판과 ZnO 박막이 $[-1101]Al_2O_3 \parallel [0001]ZnO$, $[11-20]Al_2O_3 \parallel [-1100]ZnO$ 의 결정학적 방향관계를 가지고 있음을 알 수 있다. 이러한 방향관계는 이는 r-면 사파이어 기판위에 성장한 ZnO 박막이 (11-20) 방향으로 성장하여 성장방향으로 비극성을 가지는

에피박막으로 성장했음을 의미한다. 그림 1 (b)는 RHEED 패턴 분석으로부터 결정된 에피방향관계를 보여주는 개략도이다.

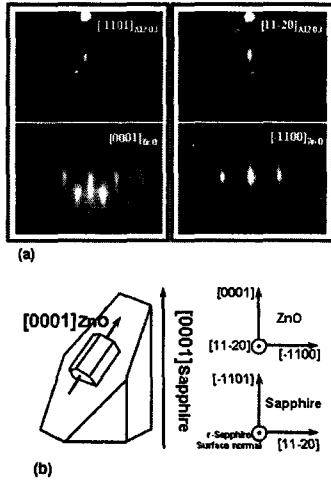


그림 1. (a) R-면 사파이어 기판 위 ZnO 박막 성장에 있어 얻은 사파이어 기판과 ZnO 박막의 RHEED 패턴. 각 패턴의 azimuth는 사진에 표시하였으며 각 세로줄은 각각 동일한 위치에서 얻은 사파이어와 ZnO 박막의 RHEED 패턴임 (b) RHEED 패턴 분석으로부터 얻은 사파이어 기판과 ZnO 박막의 에피방향관계를 보여주는 개략도

ZnO 박막시료의 XRD θ - 2θ 분석결과 그림 2의 (a)에서 보듯이 사파이어 기판 피크 이외에 ZnO (11-20) 피크($2\theta=56.255^\circ$)만이 관찰되었으며 ZnO (0002) 피크($2\theta=34.604^\circ$)는 관찰되지 않았다. 이는 ZnO 박막이 (11-20) 방향으로 성장했음을 의미하여 RHEED 패턴 분석결과와 일치한다. ZnO 박막과 사파이어 기판의 여러 면들에 대한 XRD ϕ scan 결과를 그림 2의 (b)에 나타내었다. ZnO (10-10)의 ϕ scan에서 180도 간격으로 두 개의 피크가 나타나는 것은 180도 대칭을 가짐을 보여주며 이는 ZnO 박막이 단결정으로 성장되었음을 의미한다. 사파이어 (0006), (2-1-10)과 ZnO (10-11) 면에 대한 ϕ scan결과들로부터 각 면간의 관계를 고려하면 RHEED 패턴 분석에서 결정한 에피방향관계와 동일한 방향관계를 얻을 수 있다.

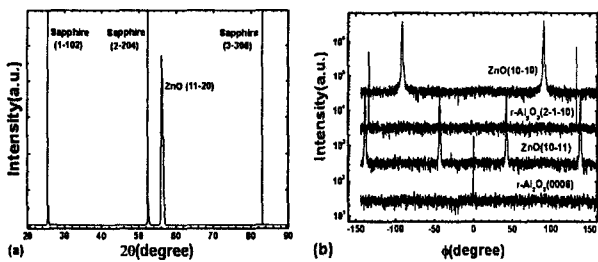


그림 2. R-면 사파이어 기판위에 성장한 ZnO 박막의 XRD (a) θ - 2θ scan 과 (b) ϕ scan 결과

그림 3은 R-면 사파이어 기판 위 ZnO 박막의 AFM 사진이다. 특정한 방향으로 facet를 관찰 할 수 있는데 그 방

향은 $\langle 0001 \rangle$ 방향임을 XRD로 확인하였다. 이러한 facet의 존재로 인하여 그림 1(a)에서와 같이 ZnO $\langle 0001 \rangle$ azimuth RHEED 패턴에서 chevron-like 패턴이 관찰되었으나 그 패턴이 명확하지 않은 것은 AFM에서 보듯이 facet morphology가 sharp하지 않기 때문이다. 이러한 facet이 존재한 ZnO 박막의 RMS roughness는 4 nm 이었다.

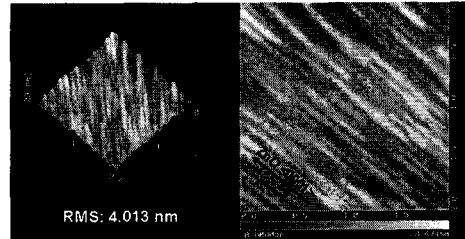


그림 3. R-면 사파이어 기판위에 성장한 ZnO박막의 AFM 사진

4. 결론

플라즈마 분자선 에피탁시 방법으로 (1-102) Al_2O_3 기판 위에 ZnO를 성장하였다. ZnO 박막은 (11-20) 방향으로 성장되어 성장방향으로 비극성인 단결정으로 성장되었다. RHEED 패턴분석과 XRD 분석으로부터 $[-1101]_{\text{Al}_2\text{O}_3} \parallel [0001]_{\text{ZnO}}$, $[11-20]_{\text{Al}_2\text{O}_3} \parallel [-1100]_{\text{ZnO}}$ 의 에피방향관계를 결정하였다. ZnO 박막은 $\langle 0001 \rangle$ 방향으로 평행한 facet 구조를 보여 주었으며 RMS roughness는 4 nm 이었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 특정기초연구사업 (R01-2004-000-10104-0)의 연구비지원으로 수행되었습니다.

참고 문헌

- [1] S. K. Hong, T. Hanada, H. J. Ko, Y. Chen, D. Imai, K. Araki, M. Shinohara, T. Yao, K. Saitoh, and M. Terauchi, "Control of crystal polarity in wurtzite crystal: ZnO films grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy", Phys. Rev. B, Vol. 65, p. 115331 (2002).
- [2] O. Mayrock, H-J. Wunsche, F. Henneberger, and O. Brandt, "Influence of internal polarization fields on the disorder broadening of excitons in (In,Ga)N/GaN quantum wells, Phys. Stat. Sol. (b), Vol. 216, p. 419 (1999).
- [3] A. Chakraborty, H. Xing, M. D. Craven, S. Killer, T. Mates, J. S. Speck, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, "Nonpolar a-plane p-type GaN and p-n junction diodes", J. Appl. Phys. Vol. 96, p. 4494 (2004).
- [4] F. Bernardini and V. Fiorentini, "Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides", Phys. Rev. B, Vol. 56, p. R10024 (1997).