

MBE법으로 성장시킨 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x=0.02$) 에피층에서의 Photoreflectance에 관한 연구

김인수 · 이정열 · 배인호 · 김상기* · 안행근** · 박성배***

영남대학교 물리학과 *한국전자통신연구소 반도체연구단
전북대학교 재료공학과 *대구대학교 물리학과
(1996년 1월 24일 접수)

A Study on Photoreflectance in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(x=0.02)$ Epilayer Grown by MBE

In-Soo Kim, Jung-Yeul Lee, In-Ho Bae, Sang-Ki Kim*,
Haeng-Keun Ahn** and Sung-Bae Park***

Department of Physics, Yeungnam University, Gyongsan Gyongbuk, 712-749, Korea

*Semiconductor Technology Division, ETRI, Taejon 305-600, Korea

**Department of Materials Engineering, Chonbuk University, Chonju Chonbuk, 560-756, Korea

***Department of Physics, Teagu University, Jinryong Gyongbuk, 713-714, Korea

(Received January 24, 1996)

요 약 - 반절연성 GaAs(100) 위에 Molecular Beam Epitaxy(MBE)법으로 In의 조성을 0.02으로 일정하게 하여 성장시킨 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 의 photoreflectance(PR) 스펙트럼 특성을 측정하였다. 기판과 에피층의 PR 신호가 분리되어 관측되었으며, 띠틈격 에너지(E_g)는 약 1.40 eV로써 Pan의 식에 fitting한 결과 약 8meV의 차이가 생겼다. 이는 에피층과 기판의 격자부정합(lattice mismatch)으로 인해 파생되는 계면에서의 응력(stress)이 그 요인으로 이것이 시료 성장시 결정성에 영향을 미치고 있음을 확인할 수 있었다. 또한, $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{As}$ 에피층은 온도 의존도가 낮고 광흡수 효율이 크며 200K 이상의 온도에서 활성화되는 것으로 분석되었고, 성장 온도보다 낮은 온도 400°C로 열처리시킨 경우에 PR 신호 분리가 가장 뚜렷하였으며, 이때 결정성 또한 향상됨을 알았다.

Abstract - We measured photoreflectance spectrum characteristics of InGaAs grown by MBE method on semi-insulating GaAs. The PR signal splitting of substrate and epilayer was observed. The band gap energy was about 1.40 eV. It make to 8 meV difference when it is fitted by Pan's equation. The reason is stress on the interface, which is due to lattice mismatch between epilayer and substrate. We became to know that reason influence crystalline on growing sample. In InGaAs epilayer, temperature dependency is low. The efficiency of photo absorption is high and activate over 200K. In this case when it is annealed at 400°C below growing temperature, PR signal splitting is remarkable and crystalline is inanced.

1. 서 론

InGaAs/GaAs계에서 격자 변형층과 격자 부정합층은 III-V 반도체 이중 구조 소자 및 전자, 광전 소자에 많이 활용되고 있으며 꾸준히 연구되어 왔다. 이 계열은 AlGaAs/GaAs계 보다 전자 이동도가 높아 양질의 high electron mobility transistors(HEMT) 소자에, 그리고 큰 Γ -L valley 분리는 hot electron device에 유용한 특성이

있으므로 레이저, 광 검출기와 태양전지 소자 등에 많이 활용되고 있다[1-4]. 또한, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 는 GaAs의 Ga 자리에 같은 III 족 원소인 In을 치환시킴으로써 얻어지는 합금으로 이 물질의 에너지 띠틈격은 x 값에 따라 0.4 eV에서 1.4 eV까지 분포한다. 이 점은 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 박막 성장이 공학적으로 매우 중요한 장점을 지니고 있음의 미한다[5, 6]. 이러한 장점을 지닌 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 는 MBE, MOCVD, LPE 및 VPE 등으로 결정 성장이 가능하며,

In_xGa_{1-x}As와 GaAs 사이에는 격자상수의 차이가 존재하기 때문에 결합이 없는 strained In_xGa_{1-x}As 층을 성장시키기 위해서는 에피층의 두께가 임계두께(critical thickness)이하여야 한다[7]. 그러나 In의 조성비가 높아지면 임계두께는 매우 얇게 되므로 In의 조성비가 0.1 정도만 되어도 임계두께는 0.01 μm 미만이 되어 그 자체만으로는 소자를 만드는 것이 불가능한 상태가 된다. 따라서 소자에의 응용을 위해서는 strained 초격자 상태를 이용하거나 이완된 상태의 에피층을 사용하게 된다. 그러므로 In_xGa_{1-x}As/GaAs 구조에서는 strain에 의한 pseudomorphic 성장 및 dislocation에 의한 이완 등이 소자 특성에 매우 중요한 영향을 미치게 된다[7, 8].

이에 본 연구에서는 반절연성 GaAs(100) 기판 위에 In의 조성을 0.02로 고정하고 0.1, 0.5 및 1.0 μm의 두께를 달리한 In_xGa_{1-x}As 에피층을 MBE법으로 성장하여 실온에서 PR 측정을 수행하였으며, 측정 온도(77~300K)와 시료의 성장 온도보다 낮은 온도(250~500°C)에서 furnace annealing(FA)법으로 열처리시켰을 때의 PR 스펙트럼 특성을 관찰 분석하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용된 In_xGa_{1-x}As/GaAs 시료들은 In(x) 조성을 0.02로 고정하여 반절연성 GaAs(100) 위에 Molecular Beam Epitaxy(MBE)법으로 성장하였다. 이때의 성장 온도는 540°C, 1.5Å/sec의 성장률로써 두께를 약 0.1, 0.5 및 1.0 μm로 각각 성장하였다. 성장시 MBE 장치 내의 진공도를 10⁻¹⁰ torr 이하로 유지하였으며, MBE 장치는 RIBER사의 SIVA45 모델을 사용하였다. 그리고 시료를 성장 온도보다 낮은 200~500°C 온도 범위의 아르곤(Ar) 분위기하에서 furnace annealing(FA)법으로 5분간 열처리를 수행하였다. PR 실험시 측정 온도는 주로 77K~300K 범위에서 수행하였다.

PR 측정 장치의 개략도는 Fig. 1과 같다. 변조 광원으로는 300 mW Ar 레이저(4880Å)를 사용하였고, 변조 주파수는 광단속기를 사용하여 17~2900Hz 범위안에서 설정하였다. Probe 빔은 500 W의 텅스텐 광원을 사용하였으며, 이를 초점거리가 0.25 M인 분광기(Spex 270 M)에 렌즈를 통해 집속시키고, 이 분광기를 통해 단색화된 빛을 시료에 입사시켰다. 시료의 상대 반사율 측정시 외부에서 빛이 들어가지 못하도록 암상자를 이용하였으며, 시료에서 산란된 레이저광을 여과하기 위하여 적외

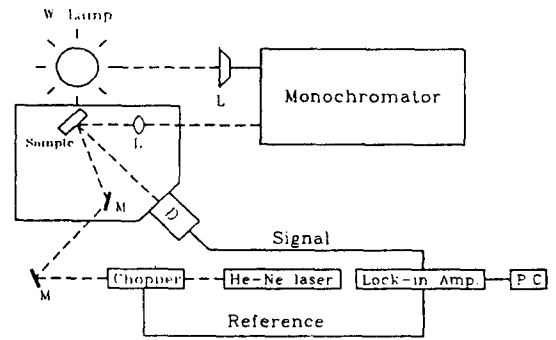


Fig. 1. Block diagram of PR system.

선 필터를 사용하였다. 분광기를 통한 단색화된 빛의 파장은 에너지로 환산하여 x축에 나타내고, 시료로부터의 신호를 p-i-n Si photodiode에 검출하여 lock-in amplifier(EG & G PAR 5209)로 증폭한 값을 intensity로, y축으로 하여 규격화된 변조 반사율(RAC/RDC)을 lock-in amplifier의 ratio function을 이용하여 PC로 받아들였다.

3. 실험 결과 및 고찰

기판으로 사용한 반절연성 GaAs와 MBE법으로 성장시킨 In_xGa_{1-x}As/GaAs에 대하여 실온에서 측정된 PR 스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. 이때 측정 조건은 변조 빔 세기 및 주파수를 각각 15 mW와 200 Hz로 하였다.

일반적으로 PR 측정시 표면에 형성된 고전장에 의해 나타나는 Franz-Keldysh oscillation(FKO) 피크가 나타나지 않을 경우, 측정된 PR 스펙트럼은 Aspnes에 의해 개발된 3차 미분형의 함수인 아래 식의 형태로 나타낼 수 있다[9, 10].

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re} \left[C e^{i\theta} (E - E_g + i\Gamma)^{-n} \right] \quad (1)$$

여기서, C는 진폭, θ는 위상, E_g는 띠간격 에너지이며, Γ는 평탄인자, 그리고 E는 포톤에너지를 나타낸다. 또한 n은 임계점의 형태에 따라 주어지는 값으로 엑시톤, 3차원의 띠사이 천이 및 2차원의 띠사이 천이에 대해 각각 2, 2.5 및 3의 값을 가진다[10]. 따라서 식 (1)을 이용하여 실험 결과를 fitting하면 띠간격 에너지 (E₀), 평탄인자(Γ) 및 스펙트럼에서 천이의 형태를 알 수 있다.

그림에서와 같이 점선은 측정된 값들을 나타내고 실

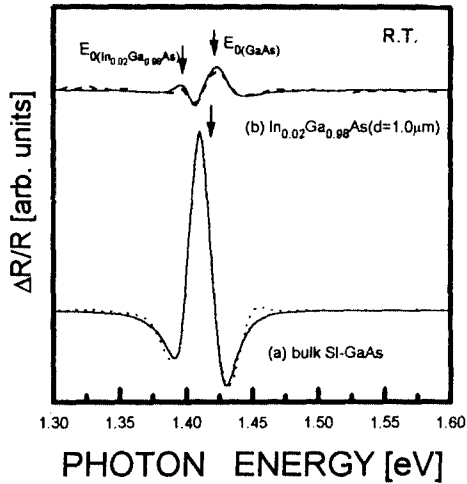


Fig. 2. PR spectrum at 300K obtained from semi-insulating GaAs and $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{As}$.

선은 식 (1)의 TDFF법으로 $n=3$ 을 사용하여 최소자승법으로 fitting하여 구한 결과를 나타낸 것이다. Fitting 결과로부터 얻은 변수 값들 중에서 bulk 반질연성 GaAs 시료의 E_0 와 Γ 값은 각각 약 1.419 eV와 16 meV로써 이 값들은 Wang과 Jiang[11]이 구한 값과 거의 일치하였다. 그리고 MBE법으로 성장시킨 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 시료의 경우는 기판과 에피층의 PR 신호가 분리되어 관측되었는데, 이때 기판과 에피층의 E_0 와 Γ 값은 각각 약 1.421 eV와 19 meV 및 1.40 eV ($\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma$)와 12 meV이었다. 여기서 bulk와 기판의 Γ 값을 비교해 보면 약 3 meV정도 차이가 발생하였다. 이는 GaAs와 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 사이의 격자상수 차이 즉, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층과 GaAs 기판과의 격자 부정합(lattice mismatch)으로 인해 성장시 계면에서 응력(stress)이 발생되기 때문으로 결정성에 영향을 미치는 것으로 보인다. 또한 Pan 등[12]이 제안한 In 조성에 따른 띠간격 에너지의 변화식을 식 (2)에 나타내었다.

$$E_0(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}) = E_0(\text{GaAs}) - 1.47x + 0.375x^2 \quad (2)$$

실험치를 식 (2)에 대입하여 In의 조성을 구한 결과

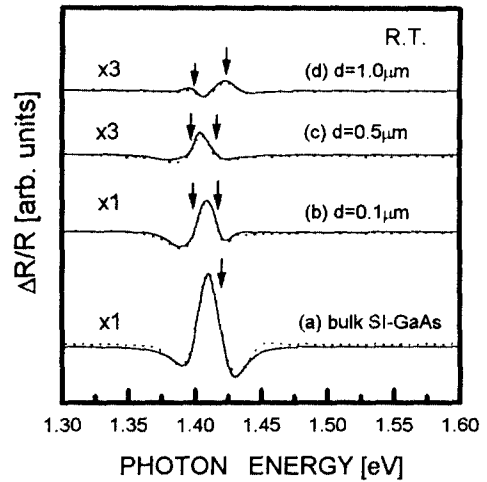


Fig. 3. PR spectra of $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{As}/\text{GaAs}$ samples with different thickness at room temperature.

약 0.02의 값을 얻었다. 이 값은 Table 1에 나타난 double crystal X-ray(DCX) 측정 결과와 잘 일치한 것으로 보아 PR법으로도 시료의 조성을 간단히 측정할 수 있음을 알았다.

일반적으로 In의 조성이 $0 < x < 0.02$ 범위 내에서 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 시료의 조성에 따른 띠간격 에너지 변화는 선형적임을 Yu와 Swaminathan 등[13]이 보고한 바 있다. 따라서 띠간격 에너지 차이 (ΔE_g)와 조성(x)의 관계식 [14]을 아래에 나타내었다.

$$\Delta E_g(\text{eV}) = 1.541 \cdot x \quad (3)$$

실험치를 대입하여 구한 결과 약 8 meV 만큼 차이를 갖는데, 이 또한 시료 성장시 격자 부정합으로 기인된 응력의 존재[12, 14, 15]를 잘 규명하는 결과들이다. 에피층의 두께를 각각 0.1, 0.5 및 1.0 μm 로 달리 성장시킨 시료에 대하여 실온에서 측정된 PR 스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다.

에피층의 두께가 증가함에 따라 ΔE_g 가 약 14, 16 및 23 meV로 증가하였으며, 에피층의 PR 신호의 뚜렷한 분리와 그 세기도 다소 증가하는 경향을 보였다. 반면에

Table 1. Parameters obtained from DCX measurement for $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$.

Epilayer thickness [μm]	Angle separation [deg.]	FWHM [deg.]	In composition (x)
0.1	-0.1295	0.048	0.019
0.5	-0.1320	0.076	0.023
1.0	-0.1274	0.067	0.020

Γ 값은 두께가 0.1 μm 일 때 약 15 meV로 감소하다가 0.5 μm 이상일때는 기판의 Γ 값보다 상당히 큰 값을 나타내었다. 이는 높은 이동도를 가지는 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 시료는 Matthews가 제안한 "임계 두께(critical thickness)" 개념 [7]을 도입하여 설명하는 것이 분석에 매우 용이하다. 시료의 mismatch strain이 작거나 충분히 얇다면, 에피층은 strain을 받고 있으나 결함(defect)이 존재하지 않는다고 할 수 있다. 이때 strain 에너지가 한계를 넘게 되어 전위(dislocation)을 발생시키기 전까지의 임계 두께를 설정할 수 있으므로 실제 성장시 중요한 정보를 제공할 수 있다. 본 연구에서의 결과들로부터도 조성이 0.02일 때 약 0.1~0.12 μm 의 임계 두께를 가짐을 PR 스펙트럼 분석으로 다소 간접적이기는 하지만 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 그 결과들을 Table 2에 나타내었다.

성장시킨 시료의 온도 의존성을 조사하기 위하여 온도 77-300K의 범위에서 측정된 PR 스펙트럼을 Fig. 4에 나타내었다.

PR 측정 온도를 감소시킴에 따라 PR 신호는 고에너지 쪽으로 이동하였으며, 신호의 이동은 온도가 감소함에 따라 GaAs 시료의 결정격자 수축[16]은 보통 원자간의 결합을 강화시키고 띠간격 에너지를 증가시키기 때문이다. 그리고 300K에서 200K로 온도를 감소시킴에 따라 PR 신호의 세기는 거의 변화가 없다가 200K 이하의 온도에서는 약 2배 정도 증가를 보였다. 이는 표면 상태에 존재하는 운반자의 농도가 laser에 의해 형성된 정공과의 결합으로 감소함으로써 원래의 상태 보다 전장이 감소하여 reflectance의 변화로 형성되는 양보다 광 흡수 효율이 더 크기 때문이다.

온도의 변화에 따른 E_g 는 다음과 같은 Thurmond의 이론식[10]으로 표현된다.

$$E_g = 1.519 - 5.405 \times 10^{-4} \left[\frac{T^2}{(T+204K)} \right] \quad (4)$$

그림에서 본 바와 같이 임계점 에너지(critical point

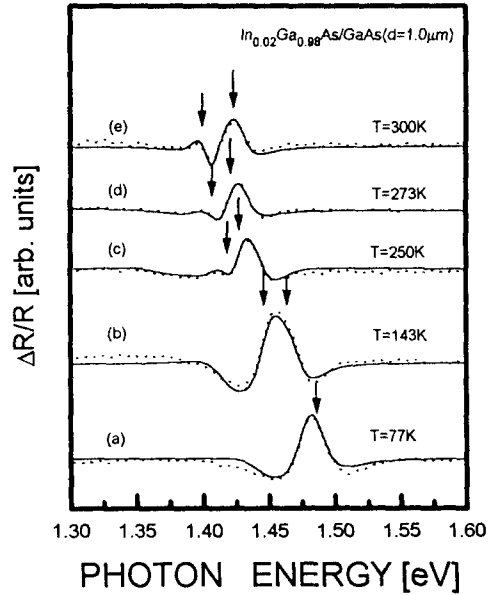


Fig. 4. PR spectra of InGaAs/GaAs measured at 77K, 143K, 250K, 273K and 300K.

energy: E_{cp})는 이론 식 (4)으로 얻은 값과 거의 일치함을 볼 수 있다. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 의 띠간격 에너지를 각 측정 온도의 함수로 Fig. 5에서 나타내었으며, 띠간격 에너지 및 평탄 인자의 값을 Table 3에 요약하였다.

Table 3에서 본 바와 같이 온도를 감소시킴에 따라 띠간격 에너지는 증가한 반면에, 평탄 인자는 다같이 감소함을 알 수 있다. 그림에서 실선은 식 (4)을 이용하여 나타낸 것이고, 원 및 사각형의 표시는 각각 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층 및 기판으로 사용된 반절연성 GaAs에 대해서 나타낸 것이다. 이 결과에서 특이한 현상을 알아낼 수 있었다. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층 시료는 bulk 시료와 같이 식 (4)에 잘 따르는 반면, 기판 시료의 측정 온도 함수에 따른 띠간격 에너지의 변화는 전 영역에 대해 급격한 지수함수적 증가를 보였다. 이는 측정 온도를 감소시킴에 따라 ΔE_g 값 감소와 관계가 있으며, 앞서 서술한 바와 같이

Table 2. Parameter values of $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{As}/\text{GaAs}$ samples with different thickness (a)substrate, (b)0.1, (c)0.5 and (d)1.0 μm at room temperature.

Thickness d(μm)	Parameters	ΔE_g (meV)	epi.- Γ (meV)	sub.- Γ (meV)	epi.- E_0 (eV)	sub.- E_0 (eV)
sub		--	--	17	--	1.419
0.1		14	12	15	1.404	1.417
0.5		16	13	19	1.402	1.417
1.0		23	12	19	1.400	1.421

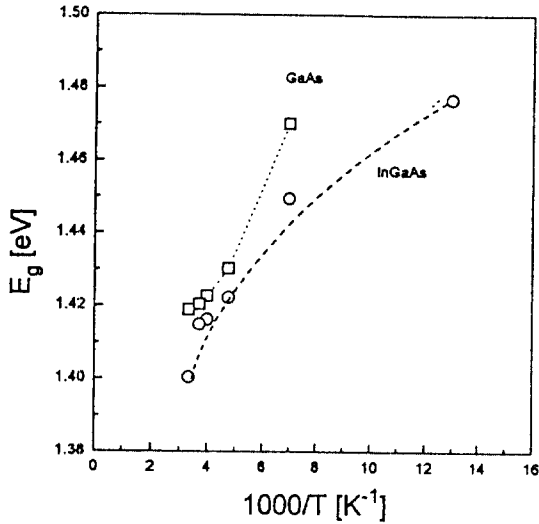


Fig. 5. Temperature dependence of the band gap energy.

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 시료에서 특히, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층은 온도 의존도가 낮으며 200K 이상의 온도에서 활성화되는 것으로 보인다.

시료의 열처리 온도에 따른 PR 스펙트럼의 변화를 알아보기 위하여 열처리 온도 200~500°C 범위에서 furnace annealing법으로 아르곤(Ar) 분위기하에서 5분간 열처리시킨 시료들의 PR 스펙트럼을 Fig. 6에 나타내었다.

열처리 온도를 증가시키에 따라 PR 신호의 세기는 400°C까지는 점차 증가하는 경향을 보이다가 이 온도 이상에서는 감소하였다. 온도 400°C에서 열처리시킨 시료에서는 as-grown 시료의 경우 보다 기관과 에피층의 PR 신호 분리가 뚜렷하였으며, E_0 값이 각각 1.41 eV, 1.43 eV로 다소 차이가 있었다. 또한 피크의 진폭이 기관일 경우 4배 정도 에피층일 경우 15배 정도 증가하였다. 이는 열처리 수행시 시료 내의 활발한 격자 재배열로 인해 표면에 존재하는 캐리어의 수를 감소시킴으로써 시료의 결정성을 향상시켰기 때문이다. 그리고, 온도 500°C에서 열처리시킨 시료의 경우는 진폭이 급격하게

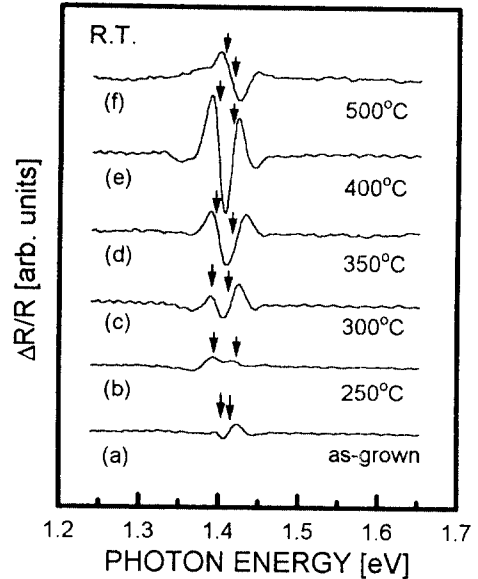


Fig. 6. PR spectra at 300K from $\text{In}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{As}/\text{GaAs}$ after furnace annealing at 250, 300, 350, 400 and 500°C for 5min.

감소함을 볼 수 있다. 이는 시료의 열처리시 격자간 열적 충돌로 인한 표면 손상이 발생되어 결정성을 저하시키기 때문이다[17, 18].

5. 결 론

본 연구에서 사용된 시료는 반절연성 GaAs(100)위에 Molecular Beam Epitaxy(MBE)법으로 In의 조성을 0.02으로 일정하게 하여 성장시킨 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ 을 사용하였으며, PR 측정 분석으로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 기관과 에피층의 PR 신호가 분리되어 관측되었는데, 이때 기관과 에피층의 E_0 와 Γ 값은 각각 약 1.421 eV와 19 meV 및 1.40 eV ($\Gamma_{15} \rightarrow \Gamma_1$)와 12 meV였다.

Table 3. Parameter values of InGaAs/GaAs obtained from PR at 77, 143, 250, 273 and 300K.

Temperature T [K]	Band gap energy E_0 [eV]		Broadening parameter Γ [meV]	
	Epilayer	Substrate	Epilayer	Substrate
77	--	1.486	--	24
143	1.446	1.464	25	21
250	1.417	1.428	31	17
273	1.407	1.422	33	20
300	1.404	1.421	12	19

2) GaAs와 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 사이의 격자상수 차이 즉, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층과 GaAs 기판과의 격자 부정합 (lattice mismatch)으로 인해 성장시 발생하는 계면에서의 응력 (stress)이 결정성에 영향을 미친다는 것을 알았다.

3) Pan 등이 제안한 In 조성에 따른 띠틈 에너지 변화식 및 Yu 등의 띠틈 에너지 차이와의 관계식에서 본 연구에 사용된 시료의 조성이 약 0.02임을 알았다.

4) 실제 성장시 중요한 인자인 임계 두께는 0.1~0.12 μm 범위내에 설정되어야함을 알았다.

5) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 에피층은 온도 의존도가 낮고 광흡수 효율이 크며 200K 이상의 온도에서 활성됨을 보였다. 반면, 기판으로 사용된 GaAs 시료는 저온으로 감소시킴에 따라 띠틈 에너지가 급격한 지수함수적 증가를 보였다.

6) 성장 온도보다 낮은 400°C에서 열처리시킨 시료에서 기판과 에피층의 PR 신호 분리가 뚜렷하였으며, 그 세기가 as-grown 시료의 경우보다 각각 약 4배와 15배 정도 증가함을 보였다. 이는 시료내의 활발한 격자 재배열로 인해 결정성을 향상시켰기 때문이다.

참고문헌

1. K. Seo, M. Heiblum, C. M. Knoedler, W. P. Hong and P. Bhattacharya, Appl. Phys. Lett., **53**, 1946 (1988).
2. A. F. D. Chin and P. Battacharya, IEEE Trans. Electron Devices **ED-36**, 2183 (1989).
3. K. Chang, R. Gibala, D. J. Srolovitz, P. K. Bhattacharya and J. F. Mansfield, J. Appl. Phys., **67**, 4093 (1990).
4. S. Katsumoto, A. Yamamoto and M. Yamaguchi, Jpn. J. Appl. Phys., **24**, 636 (1985).
5. T. P. Pearsall, IEEE J. Quantum Electron., **QE-16**, 709 (1980).
6. K. W. Carey, S. Y. Wang, R. Hull, J. E. Turner, D. Oertel, R. Bauer and D. Bimberg, J. Cryst. Growth., **77**, 558 (1986).
7. A. E. Taylor and E. Fortin, Can. J. Phys., **48**, 1874 (1970).
8. P. Melman, B. Elman, C. Jagannath, E. S. Koteles, A. Silletti and D. Dugger, Appl. Phys. Lett., **55**, 1436 (1989).
9. D. E. Aspnes, Surf. Sci., **37**, 418 (1973).
10. M. Cardona, "Modulation spectroscopy", Solid State Phys. Supply., **11**(Academic address, New York & London, 1969).
11. R. Wang and D. Jiang, J. Appl. Phys., **72**, 3826 (1992).
12. S. H. Pan, H. Shen, Z. Hang, F. H. Pollak, Weihua, Qian Xu, A. P. Roth, R. A. Masut, C. Lacelle and D. Morris, Phys. Rev., **B38**, 3375 (1988).
13. P. W. Yu, S. Ravipati, B. E. Taylor and W. C. Mitchel, J. Appl. Phys., **67**, 1471 (1990).
14. V. Swaminathan, S. Yegnasubramanian and R. Caruso, J. Electrochem. Soc., **134**, 985 (1987).
15. C. P. Kuo, S. K. Vong, R. M. Cohen and G. B. Stringfellow, J. Appl. Phys., **57**, 5428 (1985).
16. W. Zhou, M. Dutta, H. Shen, J. Pamulapati, B. R. Bennett, C. H. Perry and D. W. Weyburne, J. Appl. Phys., **73**, 1266 (1993).
17. E. G. Seebauer, J. Appl. Phys., **66**, 4963 (1989).
18. A. Badakhshan, R. Glosser, S. Lambert, M. Anthony, R. S. Sillmon, P. E. Thompson and K. Alavi, Appl. Phys. Lett., **59**, 1218 (1991).