

플라즈마 분자선 에피택시 법으로 성장된 비극성 ZnO 박막의 표면 형상 분석
 Surface Morphology Characterization of Nonpolar ZnO Thin Films Grown by
 Plasma-Assisted Molecular Beam Epitaxy

이재욱^{1*}, 이정용¹, 한석규², 홍순구²
 (1) 한국과학기술원, 신소재공학과
 (2) 충남대학교, 재료공학과

초 록 : (1-102) R-면 사파이어 기판 위에 플라즈마 분자선 에피택시 법으로 성장시킨 비극성 ZnO 박막의 표면 형상을 원자력간현미경(AFM) 및 투과전자현미경으로 분석하였다. AFM 관찰 결과 ZnO<0001> 방향으로 길쭉한 제방 모양의 표면 형상이 나타남을 알 수 있었고, 고분해능 투과전자현미경 관찰을 통해 박막 성장 중에 관찰되는 V (chevron 모양) 형상의 *in-situ* RHEED 패턴을 야기시키는 박막 표면의 facet 면을 원자 level에서 확인하였다.

1. 서 론

Wurtzite 구조의 ZnO는 상온에서 3.37 eV의 밴드갭 에너지를 가지고 엑시톤 결합에너지가 60 meV로 단파장 영역에서의 발광소자 및 레이저 다이오드 등의 응용가능성으로 각광받고 있다. 일반적으로 (0001) C-면 사파이어 기판 위에 성장된 ZnO 박막은 [0001] 방향으로 성장이 되고 wurtzite 구조는 이 방향으로 반전대칭이 없으므로 ZnO 박막은 성장방향으로의 극성을 가지게 된다.[1] 이러한 극성은 전계를 유발하여 양자우물의 에너지 밴드 구조를 변화시키므로 광소자의 전기적, 광학적 특성에 커다란 영향을 끼치게 된다.[2] 따라서 극성에 의한 전계 생성의 영향을 피하기 위해서는 성장방향으로 극성을 가지지 않는 비극성 박막을 성장시키는 것이 대안으로 제시되고 있는 상황이다.

본 연구에서는 플라즈마 분자선 에피택시 법으로 (1-102) R-면 사파이어 기판 위에 비극성 ZnO 박막을 성장시켜 표면형상을 분석하였다.

2. 본 론

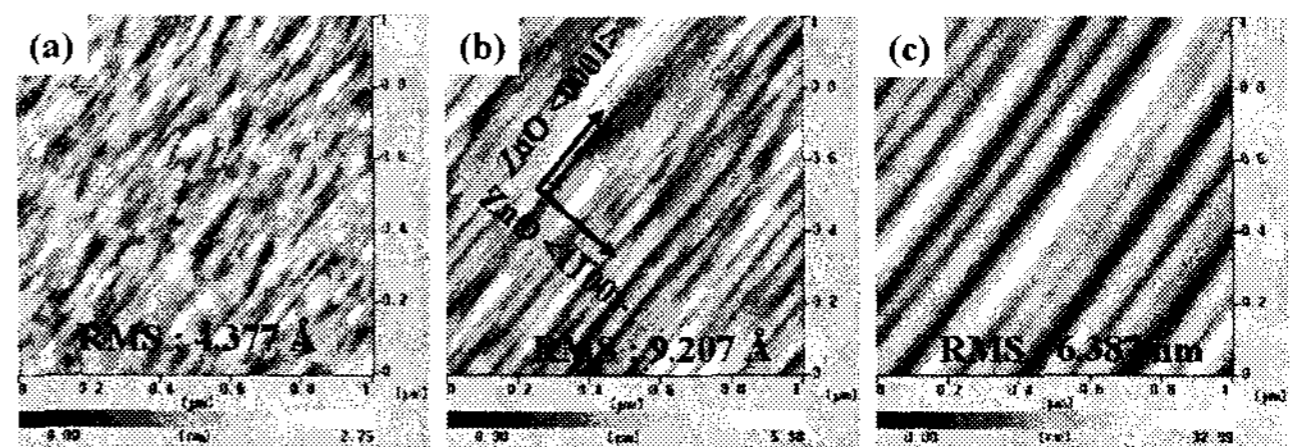
2.1 비극성 ZnO 박막의 성장 및 표면 형상 관찰 방법

플라즈마 분자선 에피택시 법으로 R-면 사파이어 기판 (10 mm × 10 mm, Hi-solar Co.,Ltd) 위에 ZnO 박막을 성장시켰다. 기판은 아세톤, 메탄올, 증류수 순으로 각각 10 분간 초음파 세척을 한 후 160 °C의 H₂SO₄:H₃PO₄=3:1(vol%) 용액에서 15 분간 에칭하였다. 이를 증류수로 충분히 세척하고 질소 블로우로 건조한 후에 챔버에 로딩하였다. 기판의 열적 세정은 700 °C에서 1 시간, 800 °C에서 30 분간 행하였다. 그 후에 ZnO 박막을 700 °C에서 2 Å/s의 Zn flux, 300 W의 산소 플라즈마 파워, 2 sccm의 산소 유량 조건 하에서 성장시켰다.

성장된 ZnO 박막의 표면 형상을 Seiko사의 SPI4000 contact-mode AFM과 JEOL사의 JEM3010 투과전자현미경으로 관찰하였다.

2.2 AFM 관찰을 통한 성장 시간에 따른 ZnO 박막의 표면 형상 변화 확인

그림 1은 성장 시간에 따른 비극성 ZnO 박막의 표면 형상의 AFM 이미지를 나타낸 것이다. 성장 시간에 따라



root mean square(RMS) 값은 큰 차이를 보이지만 성장 시 그림 1. 박막의 두께를 달리한 시료의 AFM 표면 형상. (a) 10 분 성장, (b) 30 분 성장, (c) 90 분 성장.

간에 상관없이 나타나는 시료의 공통적인 특징은 ZnO<0001> 방향으로 길쭉한 제방 모양의 표면 형상이 나타난다는 것이다. 또한 여기서 주목해야 할 점은 박막의 두께가 두꺼워짐에 따라 길쭉한 island들이 ZnO<0001> 방향으로 점점 늘어나서 접합(coalescence)이 되고 최종적으로는 이러한 island들의 형상이 완전히 없어진다는 사실이다. 박막의 두께에 따른 이러한 성장 모드는 ZnO[0001] 방향과 ZnO[1-100] 방향으로의 lattice mismatch 차이 때문인 것으로 생각된다. 즉 ZnO[0001] 방향으로의 lattice mismatch는 1.8%로 작은 반면 ZnO[1-100] 방향으로의 lattice mismatch는 15.6%로 크기 때문에 ZnO<1-100> 방향보다 ZnO<0001> 방향으로 더 빨리 결정성장이 일어나기 때문인 것으로 추정된다. 이에 대해서는 초기 성장 시료의 미세구조 관찰과 같은 추가 연구가 진행되어야 할 것이다.

2.3 투과전자현미경 관찰을 통한 박막 표면의 facet 면 확인

그림 2. (a)는 성장 시간에 따른 ZnO[0001] azimuth에서의 *in-situ* RHEED pattern 모양과 AFM 표면 형상을 나타낸 것인데 그림에서 알 수 있듯이 RHEED pattern에서 보이는 V (chevron 모양) 형상은 초기 성장(10 분 성장) 시에 명확하게 보임을 알 수 있다. 그림 2. (b)는 표면에 facet 면이 존재할 때의 RHEED pattern 형상과 실공간에서의 facet 면의 상관 관계를 보여주는 모식도를 나타낸 것이다. 이상의 결과로부터 성장된 ZnO 박막의 표면에는 facet 면이 존재함을 유추할 수 있는데 이를 확인하기 위해 시료의 최상부를 고분해능 이미지로 관찰하여 facet 면을 원자 level에서 규명하였다.

그림 3. (a)는 ZnO[0001] zone에서 관찰한 시료 최상부의 고분해능 이미지이다. (facet 면을 확인하기 위해서는 ZnO[0001] zone에서 관찰해야 함, 그림 2 참고) 그림 2. (b)는 시료의 다른 부분을 좀 더 확대하여 얻은 고분해능 이미지로 원자 level 차원에서 facet면을 정확하게 규명하였음을 보여준다. (그림 (a)와 (b) 모두 최상부는 'epoxy'로 덮여 있으므로 이는 투과전자현미경 시편 제작 과정 중의

이온 빔 연마에 의한 artifact가 아닌 시료 자체의 특성임을 알 수 있다.) 그림에서 보듯이 facet 면들은 서로 120°를

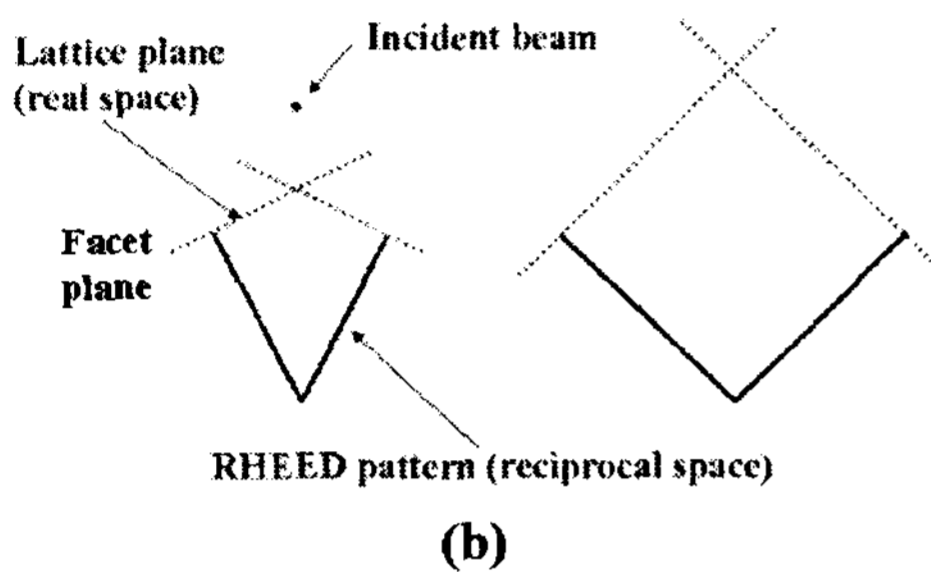
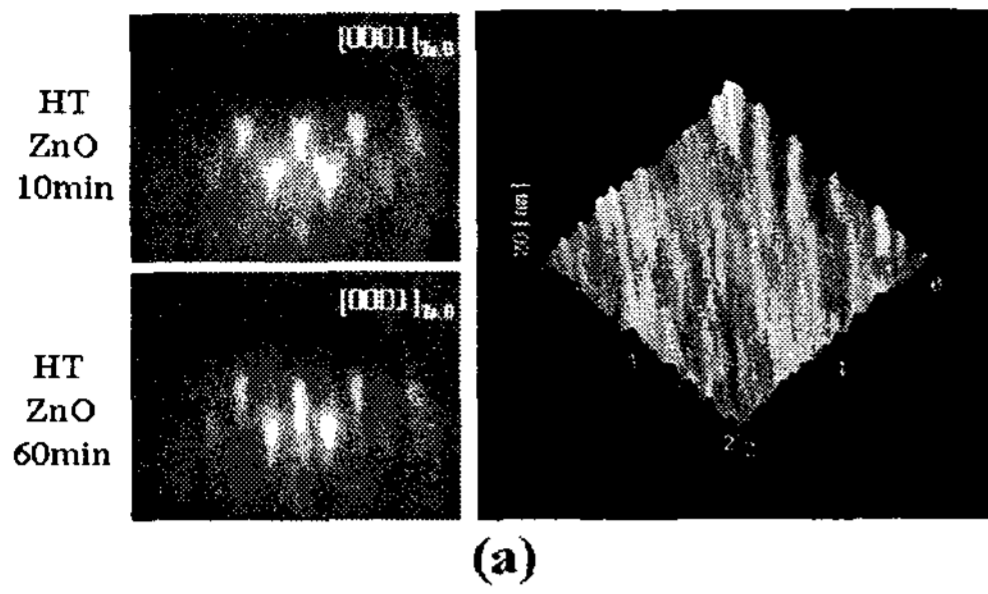


그림 2. (a) 성장 시간에 따른 ZnO[0001] azimuth에서의 *in-situ* RHEED pattern 모양과 AFM 표면 형상, (b) 역격자 공간에서의 RHEED pattern 형상과 실공간에서의 facet 면의 상관 관계를 보여주는 모식도.

이루고 있는데 이는 ZnO {1-100} M-면에 해당됨을 알 수 있었다. 표면에서 나타나는 facet 면은 각 면의 표면 에너지와 연관성이 있는 것으로 생각되나 facet 면의 생성 기구에 대한 추가적인 연구가 필요하다.

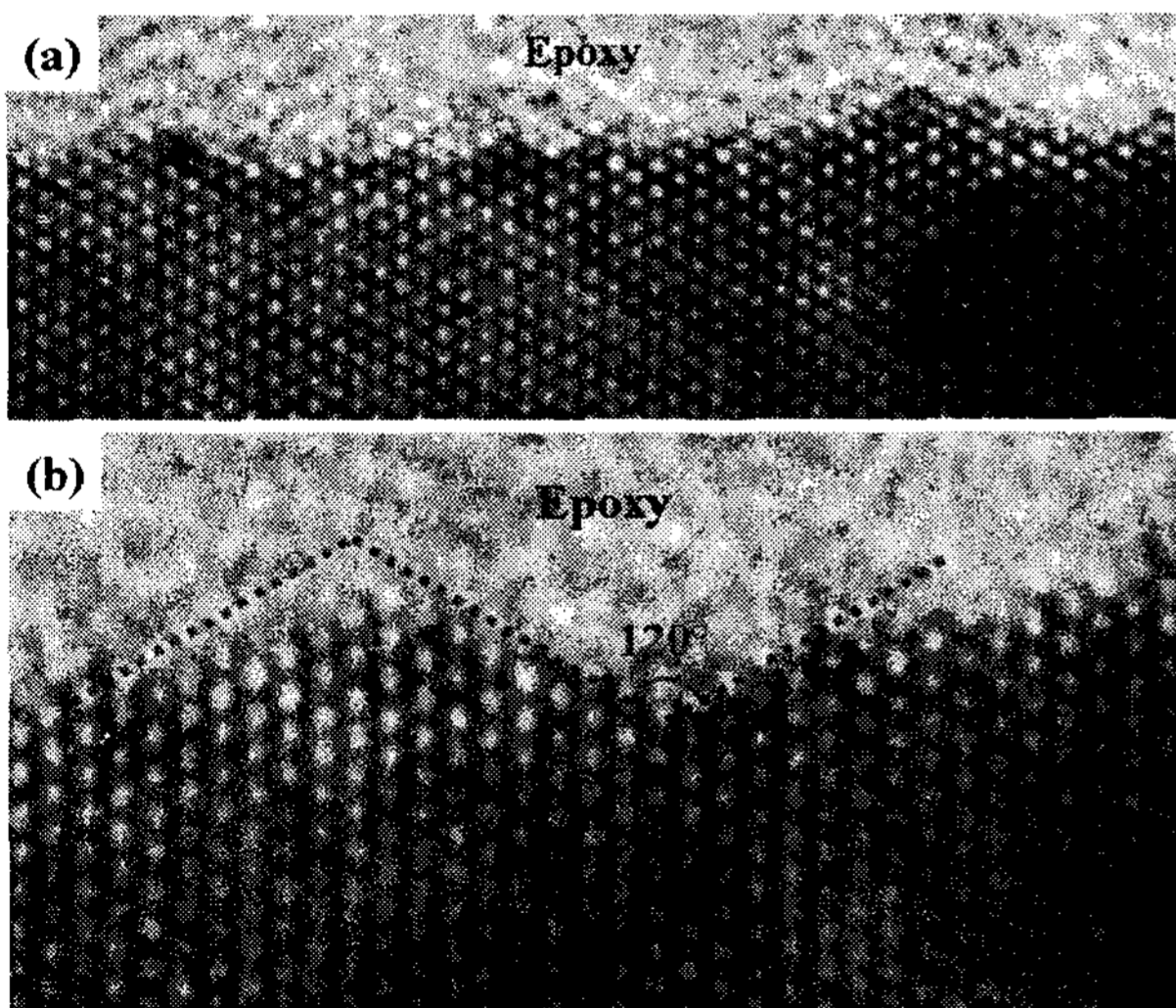


그림 3. (a) Facet 면을 확인하기 위해 얻은 시료 최상부의 고분해능 이미지, (b) 시료의 다른 부분에서 얻은 좀 더 확대된 고분해능 이미지

3. 결 론

플라즈마 분자선 에피택시 법으로 성장시킨 비극성 ZnO 박막의 표면 형상을 AFM 이미지와 투과전자현미경 고분해능 이미지로 분석하였다. 막 두께에 따른 표면 형상의 변화 경향성을 확인하여 박막의 성장 기구를 제시하였으며, 박막 표면에 존재하는 ZnO {1-100} facet 면을 확인함으로써 *in-situ* RHEED 패턴에서 보이는 V 형상의 원인을 규명하였다.

감 사 의 글

본 연구는 과학기술부 및 한국과학재단 우수연구센터사업 (센터번호 : R11-2000-086-0000-0 플라즈마응용표면기술연구센터) 지원으로 수행 되었습니다.

참 고 문 헌

[1] S. K. Hong, T. Hanada, H. J. Ko, Y. Chen, T. Yao, D. Imai, K. Araki, M. Shinohara, K. Saitoh, and M. Terauchi, "Control of crystal polarity in a wurtzite crystal: ZnO films grown by plasma-assisted molecular-beam epitaxy on GaN", *Phys. Rev. B*, Vol. 65, p. 115331, 2002

[2] T. Deguchi, K. Sekiguchi, A. Nakamura, T. Sota, R. Matsuoi, S. Chichibu and S. Nakamura, "Quantum-Confined Stark Effect in an AlGaIn/GaN/AlGaIn Single Quantum Well Structure", *Jap. J. Appl. Phys.*, Vol. 38, p. L914, 1999