[논 문] 한국재료학회지
Korean Journal of Materials Research
Vol. 13, No. 9 (2003)

질화물 반도체의 미세구조 분석을 위한 최적의 TEM 시편 준비법

조형균† · 김동찬
동아대학교 공과대학 금속공학과

Optimization of TEM Sample Preparation for the Microstructural Analysis of Nitride Semiconductors

Hyung Koun Cho† and Dong Chan Kim
Department of Metallurgical Engineering, Dong-A University, 840 Hadan-dong, Saha-gu, Busan, 604-714, Korea

(2003년 5월 26일 받음, 2003년 9월 4일 최종수정본 받음)

Abstract The optimized conditions for the cross-sectional TEM sample preparation using tripod polisher and ion-beam miller was confirmed by AFM and TEM. For the TEM observation of interfaces including InGaN layers like InGaN/GaN MQW structures, the sample preparation by the only tripod polishing was useful due to the reduction of artifacts. On the other hand, in case of the thick nitride films like ELO, PE, and superlattice, both tripod polishing and controlled ion-beam milling were required to improve the reproducibility. As a result, the ion-beam milling with the 60° modulation showed the minimum height difference between film and sapphire interface and the ion-beam milling of the 80° modulation showed the broad observable width.

Key words nitride, TEM, microcstructure, defect, tripod polisher

1. 서 론

최근에 청색, 녹색 발광 다이오드와 레이저 다이오드로 많은 연구 대상이 되고 있는 질화물 반도체는 GaN, InN, AlN 3종류의 이원계 화합물로 구성되어 있다. 이들로 구성된 InGaN, AlGaN 삼원계 및 InAlGaN 사원계 화합물은 조성에 따라 1.9 eV부터 6.2 eV에 이르는 밴드갭을 포함하고 있다.[1] 질화물 반도체는 지난 10여 년간 큰 기술적인 진보를 보여주어 현재는 수명이 1000시간 이상에 이르는 청색 레이저 다이오드를 생산할 수 있게 되었다.[2] 그러나, 질화물 반도체는 GaN 기판의 제작이 어렵고, 격자 상수가 정합인 기판이 존재하지 않기 때문에 사파이어, Si, GaAs, SiC 등의 격자상수 불일치를 보이는 기판 위에 성장을 하고 있다. 이중에서 경제적인 측면 및 물성적인 면에서 가장 효율이 좋은 사파이어 기판을 주로 이용하고 있다.

(0001)면 사파이어 기판과 GaN 박막 사이에는 약 30% 이상의 [a(GaN) = 3.1891Å, a(sapphire) = 4.758Å] 격자 상수 차이를 보여 주고 있다. 그러나, 성장 중에 격자 상수 불일치의 감소를 위해 GaN 박막은 30도 회전되어 $[11\bar{2}0]_{sapphire}//[1\bar{1}00]_{GaN}$ 및 $[2\bar{1}\bar{1}00]_{GaN}//[1\bar{1}00]Al_2O_3$의 방향관계를 가지고 성장되므로, 실제 격자 상수의 불일치는 약 16%의 값을 갖는다. 그밖에도 열팽창계수의 차이(>35%), 화학적인 성분 원소의 불일치 등으로 인해 GaN 박막의 결정학적인 품질은 크게 저하되어, 통과전위(threading dislocation; TD), 적층결함(stacking fault; SF), 역영역 경계면 (inversion domain; ID) 등의 결함이 생성된다.[3] 이러한 결함들은 결국 소자의 수명 및 효율에 큰 영향을 주어 고효율 및 고휘도 발광소자의 구현을 위해서는 이들 결함의 제어 기술 및 분석 기술은 매우 중요한 부분이다.[4]

또한, 실제 빛을 발광하는 활성층으로 사용되는 InGaN 우물 층은 구조적으로 여러 가지 특징을 보여준다. 대표적으로, GaN 위에 성장된 InGaN 층은 장파장의 소자를 제작하기 위해 In 양을 증가시킨다. 하지만 증가된 In 성분은 InGaN와 GaN 층 사이의 격자 상수 불일치를 증가시켜, 결함의 발생을 통하여 변형을 완화시키게 된다. 또한, InGaN의 구성 결합 성분인 InN와 GaN 이원계 사이에는 큰 격자 상수 불일치로 InGaN 삼원계의 성장 중 열역학적으로 공용간극을 형성하는 상분리 현상을 일으키는 요인으로 작용하여, 자발적으로 InN 성분 또는 GaN 성분이 풍부한 국부적인 영역을 InGaN 우물 층 내에 생성시킨다.[5] 그밖에도 최근에는 III-V 화합물 반도체에서 보고된 규칙 현상이 InGaN 층 내에서 성장 중 자발적으로 생성된다는 보고가 있다. 이와 같은 InGaN 층의 구조적 특성의 변화는 빛의 발광 특성에 큰 영향을 주기 때문에 자세한 연구가 요구되는 분야이다.

이와 같이 질화물 반도체는 최적의 소자를 제작하기 위해서는 반드시 미세구조에 대한 연구 분석이 필요로 한다. 현재까지 이러한 목적을 모두 만족시키며, 원자수준

†E-Mail : chohk@donga.ac.kr

의 분해능을 가지고 분석을 수행할 수 있는 장비로는 투과전자 현미경(transmission electron microscope; TEM)이 가장 대표적이다. 그러나, TEM은 시편을 파괴적으로 제작하기 때문에, 본래 시편이 가지고 있는 정보를 시편 준비과정 중에 유지하기 위한 노력이 필수적이다. 특히, 사파이어 위에 성장되는 GaN 박막의 경우 기판과 박막 사이에 결합에너지의 차이로 인해 두 재료의 스퍼터링 속도가 많이 차이가 나기 때문에, 장시간의 이온 연마에 의해 준비된 시료의 경우 박막이 우선적으로 이온 빔 연마되는 현상이 관찰되어 좋은 품질의 이미지를 얻기 힘들다. 게다가 사파이어 기판은 매우 얇을 경우 크랙(crack)이 잘 발생하는 재료로 TEM 시편을 만들기 위한 기계적 연마 과정 중 시편에 손상을 주기 쉽다. 또한, 전위를 줄이기 위한 공정으로 개발된 ELO(epitaxial lateral overgrowth), PE(pendeoepitaxy), 초격자 구조성장 등의 방법은 박막의 두께가 수 μm에서 수십 μm 정도로 두껍다.[6,7] 그러나 이들 공정의 목적인 전위의 감소 및 반응을 연구하기 위해서는 결국 같은 영역에서 전체 박막에 걸쳐 좋은 TEM 이미지를 얻어야 공정 조건에 대한 전위의 영향을 체계적으로 연구할 수 있다. 이를 위해서는 기존의 TEM 관찰보다 넓은 영역의 관찰 가능한 영역을 확보해야 한다.

이와 같은 요구 조건들에 대한 해결방안으로 그 동안 선택적인 이온 빔 연마, 트라이포드(tripod) 연마 방법 등이 제안되었으나,[8,9] 시편의 구조에 따른 최적의 시편 준비 과정에 대한 연구는 진행되지 못하고 있다. 특히, 일부 결과는 시편 준비에서 발생한 현상이 실제 시편의 정보로 오인되어 그릇된 해석을 이끌어 내는 경우도 많이 있다. 그러므로, 본 연구는 최적의 이온 빔 연마 공정 및 트라이포드를 이용한 기계적 연마 과정을 최적화 하고, 시편의 구조에 따라 가장 적합한 TEM 시편 준비방법을 체계적으로 연구함으로써, 좀더 정확하고 재현성 있는 TEM 분석을 수행하고자 한다.

2. 실험 방법

전통적으로 사용하는 단면 TEM 시편의 준비 순서는 일반적으로 시편의 절단, 에폭시를 이용한 face to face 접착, 양쪽 면의 기계적 연마, 딤플 방법에 의한 연마를 수행한 후 최종적으로 이온 빔 연마를 통하여 TEM 시편을 준비한다. 그러나 기존의 방법으로는 질화물 반도체와 같이 각 재료 사이에 스퍼터링 속도 문제, 우선적인 InN 결합의 제거 문제, 넓은 영역의 관찰 가능한 영역의 확보 문제를 포함한 여러 시편 준비과정에서의 부산물 들로 인한 재현성 있는 결과를 얻는 것이 어렵다.

본 실험에서는 시편의 절단부터 마지막 연마 과정까지 모든 공정에 대한 최적의 시편 준비 과정을 체계적으로 연구하였다. 첫번째로 시편의 절단은 기존의 Si, GaAs 및 InP 등의 기판과 달리 주의를 필요로 한다. 대부분의 반도체 기판들의 결정구조가 다이아몬드 및 면심 입방 구조를 가지고 있기 때문에, 조밀 방향을 따라 사각형 모양으로 절단하는 것이 용이하지만, 사파이어 기판과 같은 육각형 형태의 육각조밀 구조는 조밀 방향들(<11$\bar{2}$0>)이 60도의 각도를 가지고 있고, <11$\bar{2}$0> 방향 못지 않게 <10$\bar{1}$0> 방향으로도 쉽게 절단이 된다. 일반적인 TEM의 분해능이 2 Å 근처의 값을 가지기 때문에 <11$\bar{2}$0> 방향으로 사파이어 기판을 절단할 경우[z=11$\bar{2}$0], Fig. 1에서 보듯이 가장 가까운 Ga 원자들 사이의 거리가 2.76 Å으로 원자 규모의 분해능을 가지고 고분해능 TEM(high resolution TEM; HRTEM) 이미지를 얻을 수 있다. 그러나, <10$\bar{1}$0> 방향으로 절단된 시편의 경우 Figure에서와 같이 가장 가까운 Ga 원자들 사이의 거리가 1.593Å으로 일반 TEM의 분해능보다 작은 값을 가지기 때문에 HRTEM 이미지를 얻을 수 없다. 특히 대부분의 일반적인 TEM이 시편을 로딩한 후 시편을 기울일 수 있는 각이 제한되어 있어 이러한 방향성을 고려하지 않고 시편을 제작하게 될 경우 원자규모의 HRTEM 이미지의 질을 저하시킨다. 또한 시편을 많이 기울이게 되면 시편의 두께가 두꺼워지는 효과를 일으켜, 고품질의 HRTEM 이미지를 얻을 수 없다. 따라서 사파이어 기판 위에 성장된 질화물 반도체에서 방향성을 고려한 시편의 절단은 매우 중요하다.

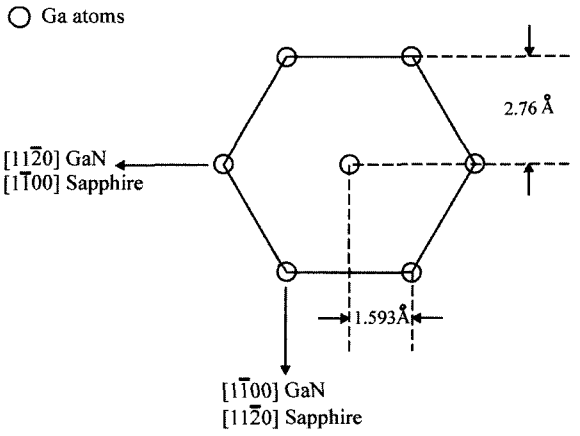

Fig. 1. Schematic diagram showing the position of the Ga atoms in GaN(0001) grown on Al_2O_3(0001).

이러한 문제를 해결하기 위해서 본 실험에서는 다음과 같은 방법을 이용하였다. Fig. 2(a)~(c)에서 보듯이 방향을 모르는 시편의 기판쪽 끝부분을 날카로운 다이아몬드 칼로 노치를 준 후 시편을 뒤집어서 박막 쪽에 힘을 주어 누르면, 주로 사파이어 기판의 조밀 방향인 <11$\bar{2}$0>을 따라 절단된다. 이 방향을 장축으로 하여 두 시편을 붙이면 원하는 방향성을 가진 시편을 제작할 수 있다.

두 번째로 기계적 연마는 쐐기 형태의 시편을 제작하기 위하여 세 개의 발을 가진 트라이포드 연마기를 가지고 수행한다. 세라믹 재료이며 삼방정계 구조를 가지고 있는 사파이어 기판은 30 μm 이하로 연마되면 쉽게 깨지는 경향을 가지고 있어 기계적 연마 및 딤플 과정이 상당히 어렵다. 그러나, 이보다 두껍게 기계적 연마

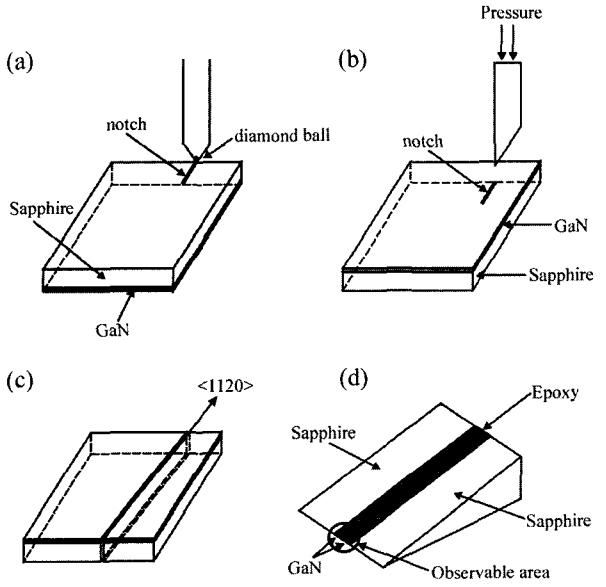

Fig. 2. (a), (b), and (c) Sample cutting procedure. (d) The TEM sample with a wedge shape obtained by tripod polisher.

를 종료하게 되면 이온 빔 연마과정에서 많은 시간이 요구되고, 시편 본래의 정보를 얻는데 문제가 발생한다. 그러나, Fig. 2(d)와 같이 쐐기 형태의 시편을 제작하게 되면 두꺼운 부분이 얇은 부분을 지탱하는 역할을 함으로서 끝부분만 매우 얇게 연마를 수행할 수 있어, 뒤이은 이온 빔 연마 공정을 매우 짧게 마칠 수 있고, 목적에 따라 이온 빔 연마 공정 없이 단지 기계적 연마를 통해서만 TEM 관찰이 가능한 두께로 제작을 할 수 있다.

또한 본 연구에서는 기계적 연마 공정에 세라믹 재료를 연마하는데 우수한 특성을 보이는 다이아몬드 디스크 및 다이아몬드 lapping film을 이용하였다. 다이아몬드 입자들이 코팅된 디스크를 가지고 약 50 μm까지 연마하고, 12, 6, 3 μm 순서로 다이아몬드 lapping film을 가지고 연마를 한다. 3 μm의 다이아몬드 lapping film으로 기판 부분이 완전히 거울면이 될 때가지 연마를 수행하고, 1 μm의 lapping film으로 박막 전체가 거울 면이 될 때까지 연마를 수행한다.

세 번째로 이온 빔 연마 공정이 필요한 시편의 경우, 앞서 언급한 여러 가지 이온 빔 연마로 인한 문제점이 발생하게 된다. 본 연구에서는 이러한 문제를 최소화 하기 위해 시편을 이온 빔 연마할 때 이온 빔에 회전 조절(rotation modulation)을 주는 방법으로 최적화시켰다. 이미 이러한 방법이 연속적인 이온 빔 연마 공정보다 스퍼터링 효율 차이로 인한 두께 단차 문제를 줄이는데 매우 우수한 효과가 있다는 것이 알려져 있다. 본 실험에서 사파이어 기판 위에 성장된 질화물 반도체의 경우, 다양한 박막의 구조에 따라 최적의 이온 빔 회전 조절 조건을 찾고자 한다. 이온 빔 회전 조절의 조건(ϕ)은 0도, 60도, 80도의 값을 이용하였다. 이 각도는 Fig. 3(a)에서 보듯이 두 시편의 접착을 위해 사용된 애폭시 선에 수직으로 이온 빔이 입사할 때 느리게 회전을 하는 한쪽 부분의 각을 나타내고, 나머지 부분에서는 빠르게 회전한다. 에폭시 선에 수직으로 이온 빔이 입사할 경우 시편에서 존재하는 두께 단차를 제거하는 방향으로 작업이 진행되고, 에폭시 선에 수평으로 이온 빔이 입사할 경우는 두께 단차를 증가시키는 방향으로 진행된다. 따라서, 에폭시 선에 수평으로 이온 빔이 입사하는 것이 TEM 시편의 질을 높이게 된다. 이 경우 어떠한 값에서 가장 두께 단차를 줄이고, 또한 관찰 가능한 영역의 폭이 증가하는지를 조사한다.

본 연구에 사용된 시료들은 유기금속 화학기상증착법(metal-organic chemical vapor deposition; MOCVD)에 의해 25 nm의 GaN 완충층을 가진 (0001) 사파이어 기판 위에 성장되었다. 성장된 시료를 각각의 조건에 따라 TEM 시편을 제작하였고, 비교 분석을 위해 TEM과 AFM 분석을 수행하였다. 이온 빔 연마를 위해 Gatan의 Duomill을 이용하였고, TEM은 200 kV에서 작동하는 1.9Å의 분해능을 가진 JEOL 사의 장비를 이용하였다.

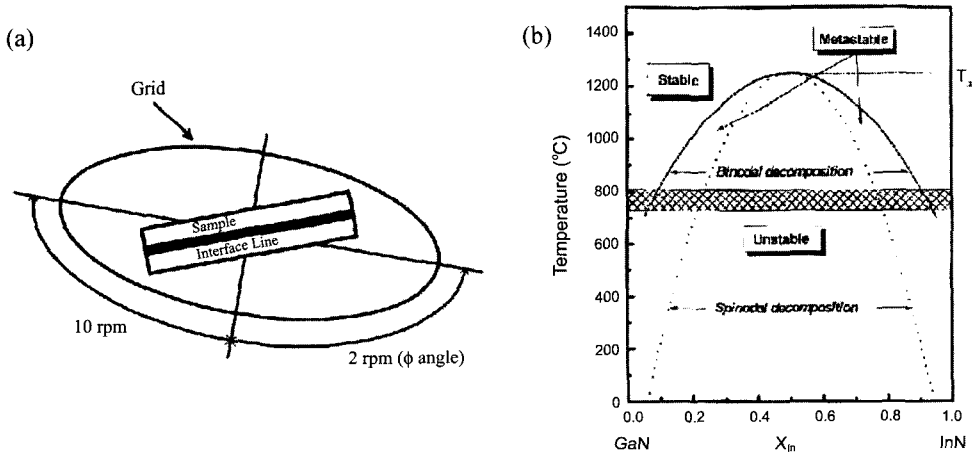

Fig. 3. (a) The principle of ion-beam milling using rotation modulation. (b) Phase diagram of the InGaN pseudobinary system. Tcr shows critical temperature.

3. 결과 및 고찰

3.1. 질화물 반도체에서 TEM 해석의 오류

GaN를 기반으로 하는 질화물 반도체에서 TEM 연구는 앞서 언급한 것과 같이 매우 중요하다. TEM 분석은 원자 규모의 분해능을 가지고 원자들의 배열을 관찰할 수 있고, 이미지들을 다양한 방법으로 관찰함으로써 결함들의 종류를 직접적으로 규명할 수 있다는 여러 가지 장점들이 있지만, 재료를 파괴적으로 제작함으로써 오는 문제들이 필연적으로 발생한다. 따라서, TEM 시편의 제작 중에 본래 시편이 가지고 있는 정보를 변형시키는 여러 가지 예들이 있다. 질화물 반도체에서 대표적인 실례들을 소개하고자 한다.

가장 많이 알려진 것이 기판과 박막 사이의 스퍼터링 속도 차이로 인한 문제이다. Fig. 4(a)는 앞서 소개한 전통적인 방법으로 제작된 TEM 시편으로부터 얻은 이미지 사진이다. 특히, 기계적 연마가 두껍게 마무리 되고, 이온 빔 연마를 회전 조절 없이 제작할 경우 Figure과 같이 두꺼운 GaN 박막 내에 두께 단차가 발생하게 된다. 스퍼터링 속도가 빠른 박막의 표면쪽은 얇게 연마가 되지만 스퍼터링 속도가 느린 기판쪽은 두꺼운 기판이 박막의 기판쪽 부분에 이온 빔이 도달하는 것을 방해하여 상대적으로 두꺼운 층을 형성하게 된다. 따라서, 박막/기판의 계면에서 좋은 이미지를 얻을 수 없고, 박막 내에서 전위의 반응 및 감소에 대한 연구가 어렵게 된다.

GaN 재료에서 최근 가장 큰 논쟁이 되고 있는 것이 발광기구와 미세구조와의 상관 관계이다. 즉, 기존의 다른 반도체에 비해 상당히 큰 전위 밀도를 가짐에도 불구하고 우수한 발광 특성을 보여주는 원인에 대해 여러 가지 결과가 보고되어 있다. 가장 관심을 받고 있는 결과는 InGaN/GaN 박막의 성장에서 InGaN 층이 자발적으로 In 조성이 풍부한 응집 현상을 보여 국부적으로 In 성분이 증가한 InGaN 우물 층을 생성한다는 것이다. 이와 같은 In 응집 현상은 In이 풍부한 영역에 국부적으로 제한되어 있던 엑시톤들의 재결합에 의해 발광이 발생되어, GaN 박막 내에 존재하는 많은 결함에도 불구하고 강한 빛의 세기를 보인다고 보고되고 있다.[4]

In 응집 현상의 생성에 대한 기구로 두 가지가 제시되었다. 첫째로, InGaN 층의 구성 성분인 InN와 GaN 이원계 사이의 격자 상수차이가 커서 온도에 대한 상평형도에서 Fig. 3(b)와 같이 성장온도에서 스피노달 분해로 인한 상분리 현상이 발생한다는 것이다.[10] 두 번째로, InGaN와 GaN 사이의 격자 불일치로 인한 변형 효과로 양자점의 형성에 설명되는 S-K 성장 방식에 따라 양자점과 유사한 In 응집이 형성된다는 것이다.[11] 이러한 결과의 대부분은 TEM의 이미지 사진에서 원자 질량이 무거운 In이 풍부한 층에서 어두운 콘트라스트를 보여주는 원리를 이용하여, 상대적으로 어두운 콘트라스트가 뭉쳐있는 부분을 보고 In 응집 현상을 설명한다(Fig. 4(b)). 따라서 질화물 반도체의 발광현상의 원인을 설명하기 위해서 TEM 연구는 중요하다.

그러나, TEM 사진에서 어두운 콘트라스트 이미지는 시편을 제작하는 중에 InN의 약한 결합에너지로 인해 우선적으로 제거된 InGaN 층으로부터도 관찰이 된다. Fig. 5는 각각 1주기와 5주기 InGaN/GaN 양자우물(quantum well; QW) 구조 시편의 TEM 결과이다. 두 개의 시편은 같은 시료의 인접 부분을 절단하여 제작한 시료들의 TEM 결과이다. 두 시료는 단지 TEM 시편 제작 공정에서만 차이가 있다. Fig. 5(a)와 (c)는 기계적 연마를 매우 얇게 하고 이온 빔 연마를 수 분내에 끝낸 후 관찰한 TEM 사진이고, Fig. 5(b)와 (d)는 기계적 연마를 두껍게 하고 이온 빔 연마를 장시간 수행한 후 관찰한 TEM 이미지 사진이다. 같은 시편임에도 불구하고 InGaN 층 내에서는 확연히 다른 결과를 보여주고 있다.

Fig. 5(b)의 장시간 이온 빔 연마를(Duomill에 의해 5시간) 한 시편에서는 이미 보고된 자발적으로 형성된 In 응집 현상과 같은 이미지가 관찰되지만, 짧은 시간 이온 빔 연마를(Duomill에 의해 30분) 수행한 경우에는 전혀 In 응집 현상으로 보고된 이미지는 관찰되지 않는다(Fig. 5(a)). In 응집 현상과 관련된 이미지 콘트라스트와 같이 변형에 의한 이미지 콘트라스트는 관찰 TEM 시편의 두께에도 영향을 받는데, EELS 스펙트럼을 이용하여 측정한 두께는 두 시편 모두 200~400 nm 사이의 두께를 가지는 것으로 측정되어 큰 차이가 관찰되지 않았다. 또한 장시간의 이온 빔 연마는 다중양자우물 내부의 일부 영역에서 삼각형 형태의 공공과 이미지를 보여준다(Fig.

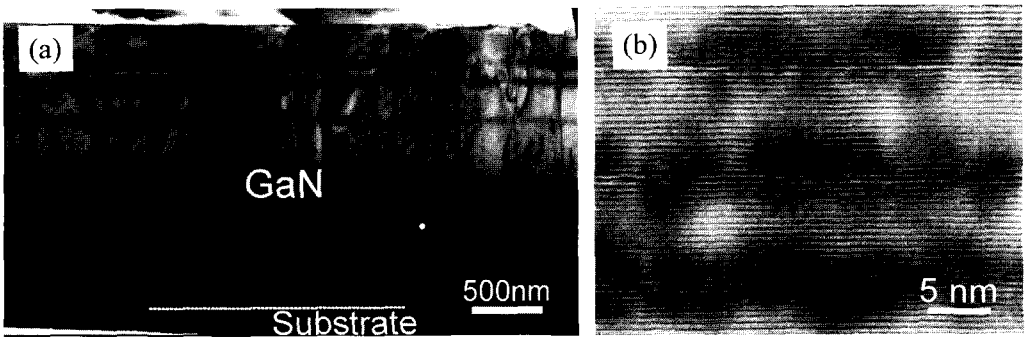

Fig. 4. (a) TEM result of a sample prepared by the conventional ion-beam milling. (b) HRTEM image showing In clustering effect observed in InGaN/GaN MQWs.

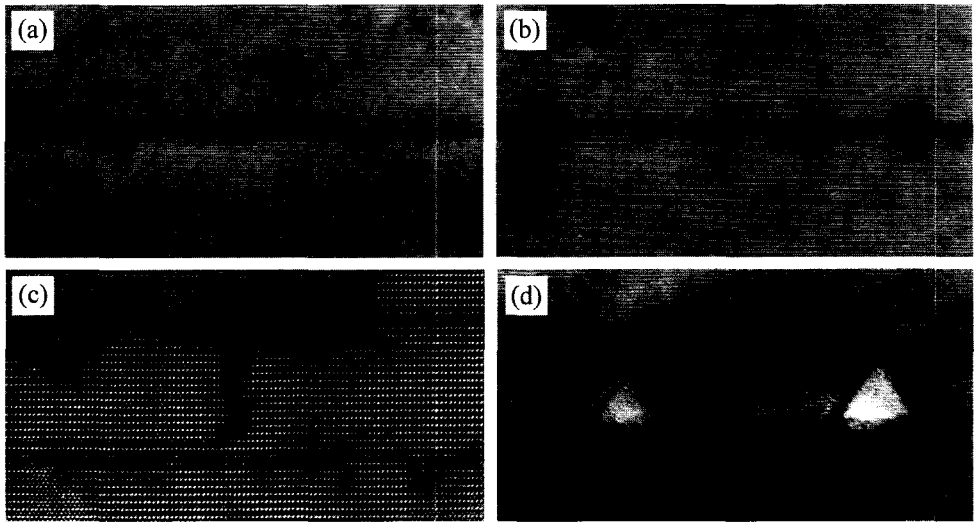

Fig. 5. TEM images prepared by (a) and (c) short time ion-beam milling and (b) and (d) long time ion-beam milling. Quantum dot-like image (In fluctuation) showing the dark contrast was observed in a sample prepared by long time ion-beam in (b). The precipitates of triangular shape were observed in a sample prepared by long time ion-beam in (d).

5(d)). 그러나, 같은 시편에서 단시간의 이온 빔 연마는 이러한 이미지가 전혀 관찰되지 않는다(Fig. 5(b)). 이러한 두 가지 현상은 모두 상대적으로 GaN 결합에 비해 작은 결합에너지를 가진 InN 결합의 이온 빔 연마 과정 중 상호 확산이나 우선적인 연마로부터 해석이 가능하다. 따라서, InGaN 층이 포함된 다중양자우물 구조의 TEM 시료 준비는 가능한 한 이온 빔 연마 시간을 최대한으로 줄여야 하고, 이온 빔 연마를 전혀 하지 않는 기계적 연마법 만에 의해 시료를 준비하는 것이 위와 같은 문제를 완전히 제거 할 수 있다.

3.2. 시편 준비법

앞에서 설명한 것처럼 TEM 시료를 준비하는데 있어 이온 빔 연마 과정은 매우 깨끗한 시료를 얻게 하지만 상대적으로 이온 빔 연마 과정 중에 발생하는 현상들로 인해 분석의 재현성을 저하시킨다. 이러한 문제는 결국 이온 빔 연마를 최대한 줄이는 방향으로 시편을 준비해야 한다는 사실을 암시하고 있다. 그러나, 시편을 TEM 관찰이 가능할 정도의 두께로 매우 얇게 기계적 연마법만으로 준비한다는 것은 일반적으로 사용하기에 매우 어렵다. 특히, 전위의 감소를 위해 개발된 ELO 및 PE 방법에 의해 준비된 시료에서는 기계적 연마로 매우 얇은 시료를 얻거나, 기계적 연마법 만으로 시료를 준비할 경우 두꺼운 박막이 큰 힘을 받아 깨지거나, 기판으로부터 분리되는 등의 손상이 가해지게 된다. 따라서, 시편의 구조는 결국 TEM 시료의 제작 공정 중에 우선적으로 고려되어야 할 사항이다. 이에 본 연구에서는 각 구조에 따른 최적의 TEM 시편 제작 과정을 연구하였다.

3.2.1. 트라이포드 연마법

트라이포드 연마는 이미 80년대 Si 등의 직접회로에서 특정부위 패턴의 TEM 관찰을 위해 고안되어, 선택적인 영역에서의 TEM 관찰에 응용이 되고 있는 시료 제작 방법이다. 최근에는 얇을 경우 쉽게 깨지는 특성을 가진 사파이어와 같은 세라믹 재료들의 기계적 연마를 위해서 사용되고 있다. 앞서 언급한 것처럼 다이아몬드 디스크 및 다이아몬드 lapping film을 이용하여 기계적 연마를 수행한다. 특히, 본 연구에서는 세라믹 재료들의 고유한 특성인 취성의 문제를 해결하기 위해 두 가지 방법을 이용하였다. 첫 번째로는 단면 TEM 시편의 한쪽 면을 기계적 연마를 한 후 다른 면을 연마할 때 사파이어 기판 위에 시편을 놓고 사용하는 방법과 연마된 한쪽 면을 Cu 그리드에 에폭시로 붙여놓고 기계적 연마를 수행하는 방법을 이용하였다. 이 방법들은 결국 트라이포드 연마기를 이용하여 쐐기 형태로 시편을 기계적 연마할 때 시편의 얇은 끝부분이 쉽게 깨지지 않도록 하는 지지대의 역할을 한다.

1 μm의 다이아몬드 lapping film에서 끝부분이 10 μm의 두께가 되면, 단면 시편의 에폭시 선이 연마 휠의 회전 방향과 완전히 90도가 되도록 하여 연마를 계속 수행한다. 이 과정은 얇은 부위에 힘이 덜 가해지도록 하기 위해 사용된다. 마지막으로 0.5 μm의 다이아몬드 lapping film으로 끝부분이 광학 현미경에 비추었을 때 무지개 색깔의 두께 줄무늬가 관찰될 때까지 계속적인 연마를 수행한다. Fig. 6은 이렇게 수행한 기계적 연마법 만에 의해 준비된 TEM 시료의 끝부분의 광학 사진을 보여준다. Figure에서 보듯이 끝부분에 두께 줄무늬들이 선명히 관찰되는 것을 확인할 수 있다. 이와 같은 방법으로 준비된 시료는 더 이상의 공정 없이 바로 TEM 관찰이 가능하고, 이온 빔 연마로 인한 다른 부산물이 전혀 없는 시편 본래의 정보를 반영한다.

3.2.2. 이온 빔 연마 조건의 최적화

앞서 언급한 것처럼 시편의 구조에 따라 이온 빔 연마를 반드시 수행해야 하는 시편들이 있다. 또한 기계적 연마법 만으로 준비된 시료는 앞서 언급한 장점을 가지

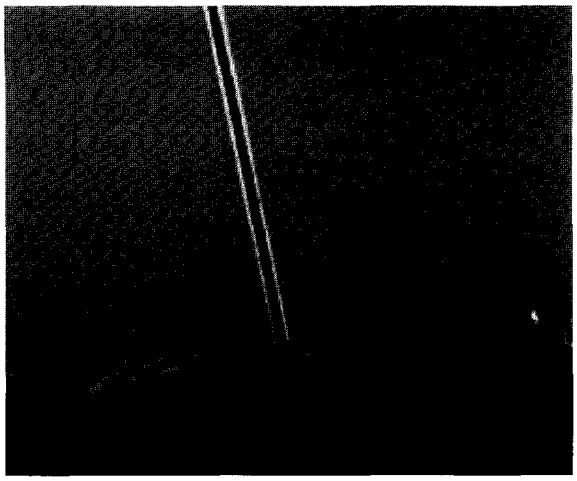

Fig. 6. Photograph showing thickness fringe, which indicates the very thin sample thickness.

고 있지만, 두께가 너무 얇아 기계적 연마 중 파괴되기 쉽고 숙련된 기술이 없을 경우 TEM 시료에 원치 않는 새로운 결함이 발생될 수 있으므로 대부분 일정 시간의 이온 빔 연마가 요구된다. 이온 빔 연마로부터 발생하는 가장 큰 문제들인, 다층 박막에서 재료들간의 스퍼터링 속도의 차이로 인한 문제들은 이미 보고된 것처럼 이온 빔 연마 중에 빔의 회전 조절을 이용하여 상당히 해결되었다.[8,9] 질화물 반도체에서는 이러한 회전 조절을 사용하지 않은 경우 Fig. 4(a)처럼 단차를 만들게 된다. 그러나, 질화물 반도체는 소자의 목적에 따라 다양한 형태의 구성으로 이루어져 있고, TEM도 결국 목적에 맞는 위치에서 관찰이 이루어져야 하며, 그에 따른 이온 빔 연마의 회전 조절 조건도 최적화되어야 한다.

이온 빔 연마에서 회전 조절의 영향을 확인하기 위하여 사파이어 기판 위에 2 μm 두께의 GaN 박막을 성장한 시편으로 실험을 수행하였다. 실험에 사용된 이온 연마 장비는 Gatan사의 Duomill을 사용하였고, 연마조건은 4.5 kV, 양쪽 Gun의 전류합이 0.6 mA, 입사빔의 각도를 12도로하여 실험을 하였다. 또한 회전 조절의 조건은 0도, 60도, 80도의 조건을 이용하였다. 여기서의 값은 Fig. 3(a)처럼 이 범위(ϕ)에서 시편이 2 rpm의 속도로 느리게 회전하고 나머지 영역에서는 10 rpm의 속도로 빠르게 회전한다. 이때 느린 속도로 회전하는 부분을 단면시편의 에폭시 선과 평행하게 놓아, 이온 빔 연마에 의해 기판과 박막 사이의 연마 두께 단차를 제거하도록 하였다. 0도의 이온 빔 연마 회전 조절 조건은 전체적으로 같은 회전 속도의 조건을 의미한다. 기타 다른 이온 빔 연마 조건은 모두 같은 상태에서 실험을 수행하였다. 같은 시간 이온 빔 연마를 수행한 후 이온 빔 연마의 영향을 조사하기 위해 AFM을 이용하여 표면의 형상을 측정하였다. Fig. 7과 Table 1에 각각 AFM 이미지 사진과, 연마 후 기판과 박막 사이의 두께 단차와 GaN 표면으로부터 두께 단차가 급격히 증가하는 지점까지의 폭을 측정한 결과가 나타나있다.

Figure과 Table에서 보듯이 두께 단차는 이온 빔의 회전 조절을 사용할 경우 감소함을 확인 할 수 있다. 특히, 사파이어 위에 성장 된 GaN 박막의 경우에 계면을 관찰하고자 할 때와 같이 두께 단차가 문제되는 시료의 경우에 60도의 회전 조절 조건을 사용할 경우 두께 단차가 가장 적은 최적의 조건임을 확인할 수 있다.

전위 밀도를 감소시키기 위한 공정으로 질화물 반도체에는 ELO 및 PE 같은 재성장 방법을 도입하고 있다. 또한 두꺼운 GaN 층을 성장할 때 저온의 GaN 및 AlN, InGaN 층을 중간에 삽입하여, 전위 밀도를 감소시키려는 연구를 진행 중에 있다. 이러한 시편들의 공통적인 특징은 박막의 두께가 수 μm에서 수십 μm에 이르기까지

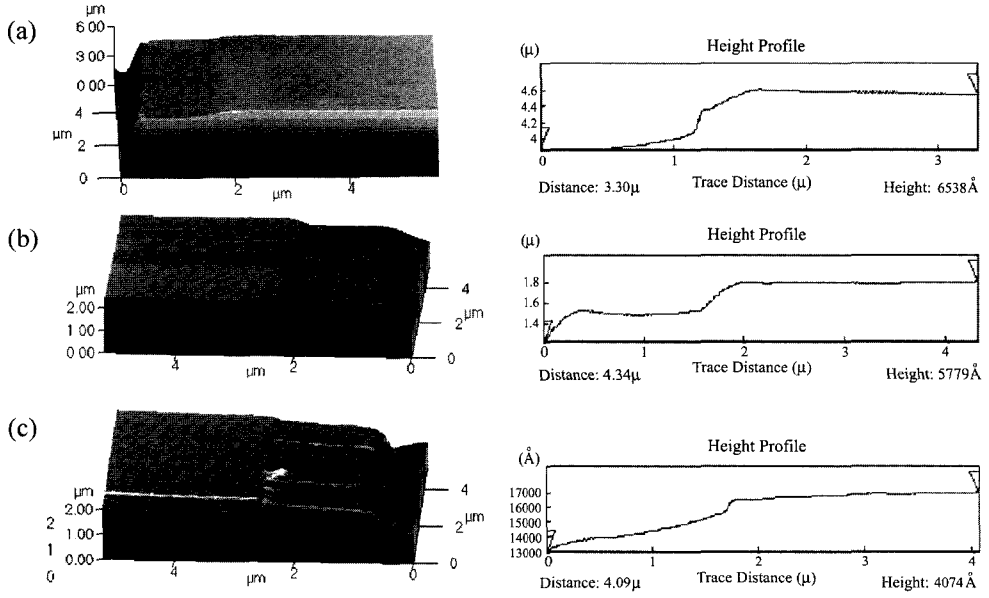

Fig. 7. The AFM height profiles of the cross sectional TEM specimen of GaN (~ 2 μm)/Al_2O_3 samples using the ion-beam milling conditions of (a) 0° (continuous ion-beam milling), (b) 60°, and (c) 80o rotation modulation.

Table 1. Summary of AFM results.

Sector speed control condition	Height difference	Ion-milled width
0°	6538 Å	1.8 μm
60°	3000 Å	2.0 μm
80°	4074 Å	2.3 μm

매우 두껍다는 것이다. 또한 전위 밀도의 감소가 주된 목적이기 때문에 TEM을 이용한 공정 조건의 연구 및 전위의 영향이 매우 중요하다. 따라서 이러한 연구를 위한 TEM 시료들은, 같은 위치에서 전체 박막에 걸쳐 유사한 두께를 가져야 기판으로부터 성장된 전위들의 영향에 대해 재현성 있는 연구를 수행할 수 있다. 그러므로, 이러한 종류의 시료에서 가장 중요한 부분은 박막 내에 관찰 가능한 영역이 넓어야 한다는 것이다. 즉, 이온 빔 연마에서 비슷한 두께로 이온 빔 연마되는 박막 층의 폭이 중요한 변수이다. Table 1에서 보듯이 각각의 회전 조절 조건에서 80도의 회전 조절 조건이 가장 넓은 폭의 관찰 가능한 영역을 생성함을 볼 수 있다. 따라서, 위와 같은 목적을 위해 설계된 시료의 경우 80도의 이온 빔 연마 조건을 사용하는 것이 적합하다.

Fig. 8은 AFM 결과에서 최적의 조건으로 판별된 조건들을 가지고 제작된 시편들의 TEM 이미지 사진들이다. Fig. 4(a)와 같이 두꺼운 기계적 연마를 한 후, 이온 빔 회전 조절 효과 없이 제작된 시료의 경우 박막 내에 두께 단차로 인한 이미지가 관찰되지만, Fig. 8(a)처럼 얇게 기계적 연마를 한 후 60도의 회전 조절 조건에서 이온 빔 연마된 시료에서는 이러한 문제가 제거되고 전체적으로 우수한 품질의 TEM 이미지를 얻을 수 있다. Fig. 8(b)는 박막/기판 계면 부분에서 관찰한 고분해능 TEM 이미지 사진이다. GaN 박막 내에 넓은 영역에 걸쳐 전위, 적층결함과 같은 결함을 원자 규모로 관찰 할 수 있고, 사파이어 기판도 뚜렷한 원자의 이미지를 얻을 수 있다.

Fig. 8(c)는 전위의 감소를 위해 박막 내에 SiO_2 층을 삽입하여 재성장 한 ELO 공정에 의해 제작된 질화물 박막인데, 박막의 두께가 상당히 두껍다. 그러나, 80도의 회전 조절을 이용할 경우 Figure처럼 우수한 품질의 이미지를 넓은 영역에서 얻을 수 있고, 재성장 조건이 전위에 미치는 영향을 정확히 분석해낼 수 있다. 또한, Fig. 8(d)는 4.5 μm 두께의 두꺼운 GaN 박막 내에 저온 InGaN를 성장한 시료로 전위의 반응에 주요 관심이 있는 시료이다. 이 경우 전체 박막에 걸쳐 같은 위치로부터 이미지를 얻어야 하는데, Figure에서 보듯이 80도의 회전 조절을 사용할 경우 매우 두꺼운 박막 내에 균일한 콘트라스트의 이미지를 얻을 수 있다.

4. 결 론

박막 내에 무수히 많은 결함이 존재하는 질화물 반도체는 TEM을 이용한 미세구조의 연구가 수반되어야 하는데, 실제 TEM 시료의 제작과정에 대해 주의를 기울

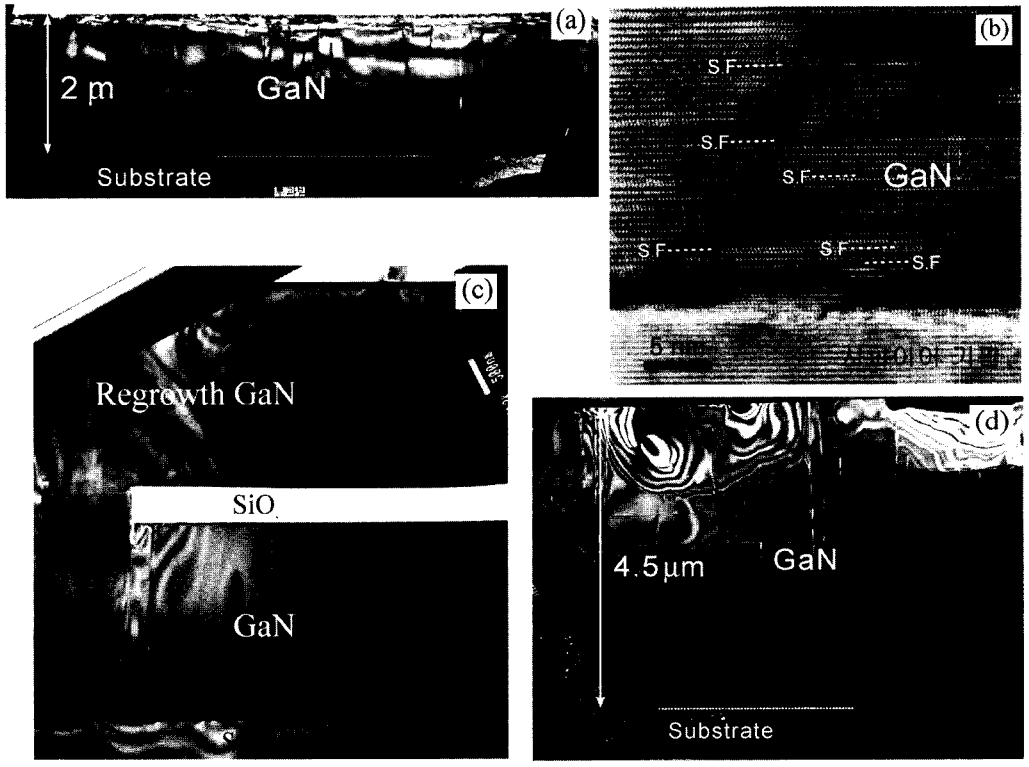

Fig. 8. (a) TEM image and (b) HRTEM image of a sample prepared by the modulation condition of 60°. (c) and (d) TEM images of samples with the thick nitride film prepared by the modulation condition of 80°.

이지 않으면 여러 가지 문제를 유발하게 된다. 본 연구에서는 질화물 반도체의 TEM 시편 제작과정에 대하여 일어날수 있는 오류들과 함께, 박막의 구조에 따른 시편 제작 방법을 자세히 소개하였다. 최적화된 트라이포드를 이용한 기계적 연마 및 이온 빔 연마 조건을 이용하여 제작된 TEM 시료는 재현성 및 분석의 정확도를 향상시킨다.

감사의 글

이 논문은 2002년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음(KRF-2002-041-D20238).

참 고 문 헌

1. S. Nakamura and G. Fasol, The Blue Laser Diode, Sringer, Berlin, 1997.
2. S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, H. Kiyoko and Y. Sukimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, L217 (1996).
3. S. C. Binari and H. C. Dietrich, in "GaN and Related Materials", edited by S. J. Pearton (Gordon and Breach, New York, 1997). pp. 509-534.
4. J. E. Northrup and L. T. Romano, in "Gallium Nitride and Related Semiconductors", edited by J. H. Edgar, S. Strite, I. Akasaki, H. Amano and C. Wetzel (INSPEC, Stevenage, U.K., 1999), Vol. 23, Chap. A7.2, pp. 213-220.
5. Y. Narukawa, Y. Kawakami, M. Funato, S. Fujita, S. Fujita and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett., **70**, 981 (1997).
6. S. Tomiya, K. Funato, T. Asatsuma, T. Hino, S. Kijima, T. Asano and M. Ikeda, Appl. Phys. Lett., **77**, 636 (2000).
7. C. I. H. Ashby, C. C. Mitchell, J. Han, N. A. Missert, P. P. Provencio, D. M. Follstaedt, G. M. Peake and L. Griego, Appl. Phys. Lett., **77**, 3233 (2000).
8. P. H. Chang, M. D. Coviello and A. F. Scott, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., **115**, 93 (1988).
9. J. P. Benedict, R. M. Anderson and S. J. Klepeis, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., **523**, 19 (1998).
10. S. Yu. Karpov, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res., **3**, 16 (1998).
11. Y. Arakawa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett., **40**, 939 (1982).