

실리콘 기판 위에 플라즈마 분자선 에피택시를 이용하여 성장된 질화알루미늄 박막의 특성분석

Characterization of AlN thin films grown by plasma assisted molecular beam epitaxy on Si substrates

홍성의, 한기평, 백문철, 조경익

(Sung Ui Hong, Gee Pyung Han, Mun Cheol Paek, Kyung-ik Cho)

Abstract

Growth characteristics and microstructure of AlN thin films grown by plasma assisted molecular beam epitaxy on Si substrates have been investigated. Growing temperature and substrate orientation were chosen as major variables of the experiment. Reflection high energy electron diffraction (RHEED), X-ray diffraction (XRD), atomic force microscopy (AFM) and transmission electron microscopy /diffraction (TEM/TED) techniques were employed to characterize the microstructure of the films. On Si(100) substrates, AlN thin films were grown along the hexagonal c-axis preferred orientation at temperature range 850-900°C. However on Si(111), the AlN films were epitaxially grown with directional coherency in AlN(0001)/Si(111), AlN(11̄00)/Si(110), and AlN(11̄20)/Si(112) at 850°C and the epitaxial coherency seemed to be slightly distorted with increasing temperature. The microstructure of AlN thin films on Si(111) substrates showed that the films include a lot of crystal defects and there exist micro-gaps among the columns.

Key Words : AlN, plasma assisted molecular beam epitaxy, thin film growth,

1. 서론

6.2eV 정도의 넓은 에너지 밴드폭을 갖고 있는 질화물 반도체 소재로써 AlN은 높은 항복전압과 물리적인 강도를 가지고 있어서 고온 고전력 전자소자¹⁾로 응용이 되며, 우수한 압전특성을 이용한 표면탄성파 (SAW) 필터 소자에 응용^{2,3)} 된다. 일반적으로 AlN박막의 성장을 위해서는 사파이어 기판을 많이 사용해왔으며 최근에는 GaN 박막성장을 위한 완충

층으로써 많이 적용되고 있다. Si 기판을 사용한 성장기술 연구는 Al₂O₃기판에 비해 월등히 높은 가격 경쟁력과 대면적의 기판을 얻을 수 있는 점, 특히 축적된 Si 반도체 소자기술과 접목하여 각 기술의 장점을 활용할 수 있으므로 많은 연구자들의 이목을 집중시키고 있다. 그러나 Si(111) 기판의 경우 AlN과 격자불일치가 18.9%에 이르고, Si(100) 기판인 경우에는 결정방위의 정합성이 이루어지기 어려워 실제로 양질의 박막을 성장시키기 곤란한 문제점 등이 있다. Meng 등⁴⁾은 AlN를 Si(100) 기판 위에 성장시킨 후 평면 TEM으로 관찰하여 직경 100Å 정도 크기의 작은 입자가 무질서하게 배열되어있는 주상구조(columnar structure)의 결과를 발표한 바 있다.

실제적으로 대부분의 AlN 박막성장 연구는

* 한국전자통신연구원 회로소자기술연구소 정보저장소자팀
(대전시 유성구 가정동 161)
Fax: 042-860-5202, Tel: 042-860-6244
E-mail : mcpaek@cadvax.etri.re.kr

Si(111) 기판에서 실험이 행해지고 있는데 Si 반도체 소자는 거의 Si(100) 기판에서 제작되고 있다. 본 실험에서는 이와 같은 배경 하에서 rf 플라즈마 분자선 에피택시 (rf PAMBE) 장비를 사용하여 성장온도 및 기판의 방향성에 따른 AlN 박막의 결정성 변화를 살펴보고자 하였다. 사용한 기판은 5인치 직경의 Si(100) 및 Si(111) 웨이퍼를 각각 선택하였다. 특히 성장된 AlN 박막의 미세구조와 표면구조 등에 대해 성장조건을 변수로 하여 분석하였다.

2. 실험방법

사용된 MBE는 rf 플라즈마를 원료 공급장치로 활용한 장비로서 Al의 원료로서는 기존의 고체원료를, 질소의 원료로는 N₂ 기체의 rf 플라즈마를 이용하였다. N₂ 기체는 rf 플라즈마 공급장치 내의 플라즈마 발생영역에서 분해가 되어 주 챔버(main chamber)로 유입되는데 플라즈마 공급장치는 13.56 MHz의 rf를 사용하며 600W까지 사용이 가능하다. rf 매칭은 가변축전기로써 반사 파워(reflect power)를 5% 이하로 조절 할 수 있으며, N₂ 기체의 유량은 MFC를 통하여 일정한 유량을 유지하여 안정된 플라즈마를 형성토록 하였다. 주 챔버는 터보 분자펌프, 티타늄 이온펌프 등을 사용하여 실험 전의 초기 진공도를 약 4×10^{-11} torr 정도로 유지하였으며, 시편교환을 위한 장착-잠금식(load-lock) 챔버는 터보 분자펌프로써 진공도를 약 8×10^{-8} torr 정도로 유지하였다. AlN 박막 성장 시의 진공도는 약 4×10^{-5} torr 정도이었다. 사용된 기판은 5인치 직경의 Si(100) 및 Si(111) 웨이퍼이었다. Si 기판을 주 챔버 내로 장입한 후에는, 850°C에서 20분 동안 열처리를 하여 Si 기판에 존재하는 자연산화막을 제거하였다. 박막 성장의 온도범위는 750~900°C까지로 하였고 Al의 유량은 5.1×10^{-7} torr로, N₂ 기체의 유량을 2sccm으로, 그리고 이 때의 플라즈마의 파워는 360W (reflect power 4W)로 고정한 후 3시간 동안 성장을 하였다. AlN의 성장 중에는 RHEED를 이용하여 10keV의 전자선으로 AlN박막의 결정성을 살펴 보았으며, 성장된 AlN 박막은 XRD, AFM 및 TEM을 통하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

AlN 박막의 초기성장조건을 잡기 위하여 *in-situ* 측정장치인 RHEED 패턴을 조사하였다. Si(100) 및 Si(111) 웨이퍼에서 모두 유사한 결과를 보였는데 그

림 1.은 Si(111) 웨이퍼의 경우로써 800°C이하에서는 비정질 또는 다결정일 때 나타나는 희미한 형태의 환형 패턴(ring pattern)이 관찰되었고, 850°C이상에서 점 패턴(spot pattern)이 관찰되었다. 이는 AlN 박막 성장 초기에 비정질 및 미세 다결정 층이 형성되고 이어서 결정질 층이 성장하는 과정에서, 온도가 낮을수록 비정질 층이 그대로 존재하거나 오래 잔류하는 것으로 생각된다. 그러나 약 2~3분 이후에는 결정질의 점 패턴으로 관찰되었다.

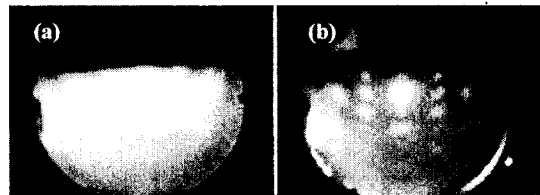


Fig. 1. Si(111) 기판에서 성장된 AlN 박막의 초기 RHEED Pattern으로 성장온도 (a) 800°C에서는 비정질 형태를, (b) 850°C에서는 결정질 형태를 보이고 있다.

Auner 등⁽⁵⁾은 PAMBE를 이용하여 400~600°C 부근의 저온에서 성장한 AlN 박막의 분석에서 성장 초기에 비정질 층이 존재함을 RHEED로 확인하고 두께가 증가하면서 결정화하는 현상을 보고하였다. 여기서 비정질 층의 존재 및 두께는 성장온도에 따라 다르며 저온일수록 그 현상이 심화되는 것으로 보고하였다. 본 실험에서는 박막의 결정성 연구를 위한 목적으로 850°C 이상의 성장온도에서 실험을 수행하였다.

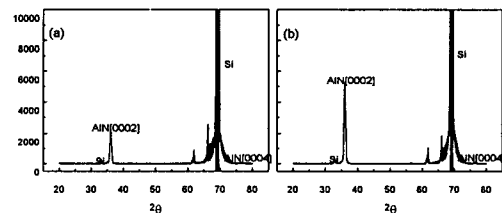


Fig. 2. Si(100)위에 성장된 AlN 박막의 XRD 패턴으로 박막의 성장온도는 각각 (a) 850°C 및 (b) 900°C 이었다.

그림 2.는 Si(100)기판 위에 약 3000Å의 두께로써 성장한 AlN 박막에 대하여 $\theta-2\theta$ XRD 분석을 수행한 결과이다. 850°C와 900°C로 성장한 경우에 모두 AlN 육방정계 구조의 기저면인 (0002) 면을 계면에 평행한 적층면으로 하여 성장하고 있으며 우선

배향(preferential orientation) 형태를 취하고 있는 것으로 나타났다. 이것은 육방정계의 조밀 결정면인 (0002) 기저면에서 표면에너지가 가장 낮으므로 Si(001) 면에서 초기에는 비정질층이 형성된 후에 자연스럽게 (0002)면을 적층면으로 하여 결정성장을 하는 것으로 판단된다. 이 형태는 본 실험의 온도범위에서 변화가 없이 일정한 모양을 보였다. 그러나 그림 3의 Si(111) 기판 위에 성장한 AlN 박막의 XRD 분석결과에서는 온도에 따른 결정성의 변화가 관찰되었다.

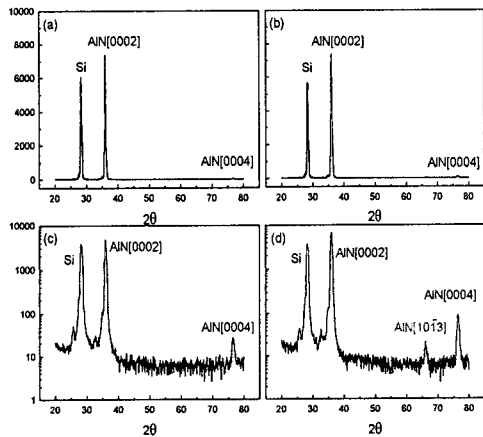


Fig. 3. Si(111)위에 성장된 AlN 박막의 XRD 패턴으로 (a), (b)는 각각 850 및 900°C에서 성장된 박막의 X-선 회절강도를 선형 스케일로, (c), (d)는 동일한 패턴의 X-선 강도축을 로그 스케일로 나타내었다.

우선 Si(100) 기판의 경우와 비교하여 볼 때 동일한 두께 5500Å에서 Si 기판에 대한 AlN 박막의 상대적인 X-선 회절강도가 높게 나타났는데 이것은 Si(111) 면이 육방정계의 AlN 기저면과 상대적으로 유사하여 우선 배향성이 높게 나타난 것으로 보인다. 그리고 그림 3의 (a), (b)와 같이 X-선의 강도축인 세로축을 선형으로 하였을 때에는 큰 차이가 보이지 않으나 (c), (d)와 같이 로그 축으로 변환하면 AlN층의 기저면인 (0002) 이외에 AlN(10 $\bar{1}$ 0) 및 AlN(10 $\bar{1}$ 3) 면의 X-선 피크가 관찰되는 것을 볼 수 있다. 그 강도는 매우 낮지만 이러한 현상이 나타나는 것은 기판의 온도에 따른 변화로써 다음과 같이 설명되어진다. 고온에 이룰수록 그림 1의 RHEED 패턴에서 보인 바와 같은 초기 비정질 층의 두께가 얇아지고 쉽게 사라짐에 따라 내부응력의 완충효과가 낮아지며, Al 및 N 원자의 표면 이동도가 증가

함에 따라 보다 안정적인 결정성을 유지하기 위해 일부의 영역에서 결정성의 변형이 일어나는 것으로 판단된다. 이러한 현상이 Si(100) 기판에서 나타나지 않는 것은 Si 기판과 AlN층의 계면에 대한 결정방위에 상대적으로 정합성이 약하여 원자의 재배열이 일어나지 않기 때문인 것으로 보인다. 실제로 이 시편에 대해 X-선 로킹커브로서 박막의 결정성을 분석한 결과 850°C에서 성장한 AlN에서의 반치폭은 약 3000 arcsec로, 900°C인 경우에는 3400arcsec로 결정성이 저하된 것으로 나타났다.

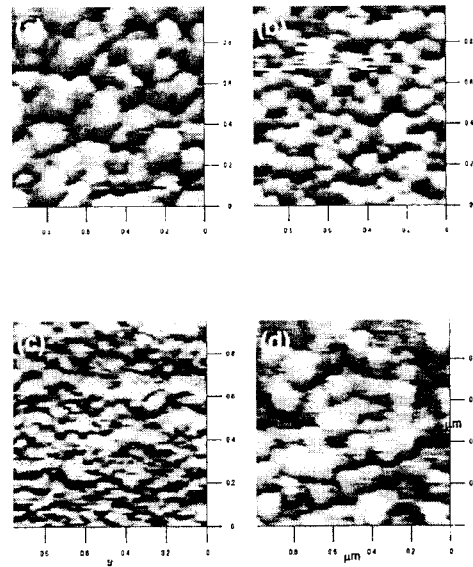


Fig. 4. Si 기판위에 성장된 AlN 박막의 AFM 사진으로 (a), (b)는 Si(100) 위에서 850, 900°C에서 성장한 것이고 (c), (d)는 Si(111) 위에서 각각 850, 900°C에서 성장한 것이다.

그림 4는 Si(100) 및 Si(111) 기판 위에 각각 성장된 AlN 박막의 표면형상을 분석하기 위하여 AFM(Atomic Force Microscopy)으로 관찰한 것이다. 앞에서 설명한 바와 같이 (a), (b)의 Si(100) 기판 위의 AlN 박막 표면에서는 큰 차이가 없이 동일한 형태를 보이고 있으며 무수한 입자들이 배열되어 있는 모양을 나타내고 있다. 반면에 (c), (d)의 Si(111) 기판 위의 AlN 박막 표면에서는 각각 다른 모양을 보이는데 저온인 850°C에서는 일부 입자상을 제외하고는 비교적 매끈하고 고른 표면형상으로 나타나며 900°C에서는 Si(100)와 같은 입자형의 불규칙한 분포형상으로 나타난다. 이것은 결정성의 변형으

로 인한 현상으로 보인다. 그림 5(a)는 Si(111) 기판에 성장한 AlN 박막에 대해 계면에 수직인 $\text{AlN}[1\bar{1}00]/\text{Si}[110]$ 방향으로 각 층의 단면을 TEM으로 관찰한 것이다. 여기에서는 각 층 간의 격자불일치 및 열팽창계수 차이로 인한 기계적인 응력으로 Si 기판에 많은 변형 콘트라스트가 발생한 것을 알 수 있다. 그리고 AlN 박막 중에는 수직방향으로 수많은 결함들이 나타나는데 이들은 모두 전위 및 적층결함 등의 결정결함이며 명시야 및 암시야 분석에 의해서는 결정입계가 관찰되지 않았다.

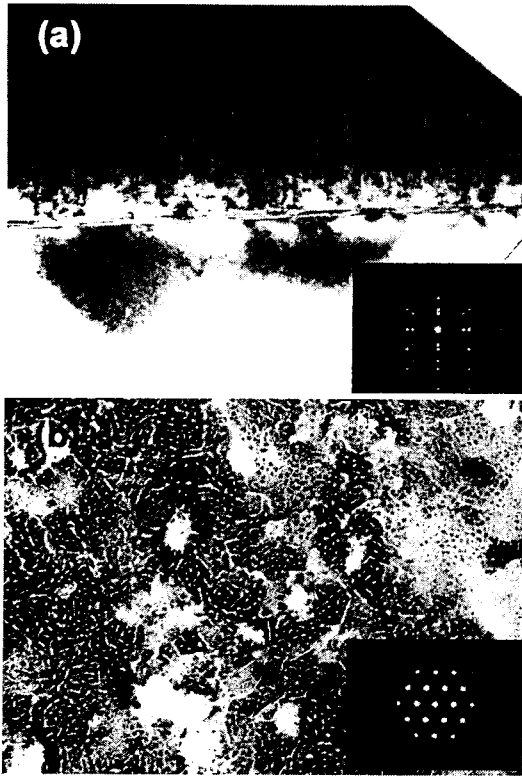


Fig. 5. Si(111)기판에서 850°C의 성장온도에서 성장된 AlN 박막의 TEM 분석결과;
(a) $\text{AlN}(1\bar{1}00)/\text{Si}(110)$ 의 단면사진 및 회절패턴
(b) $\text{AlN}(0001)$ 의 SADP와 AlN의 평면 사진 및 회절패턴을 보이고 있다.

이 전위와 적층결함은 매우 높은 밀도로 분포하고 있으며 특히 계면에서의 기계적인 응력이 집중되어 Si 기판에 많은 응력분포 현상이 나타난 것으로 보인다. 이러한 많은 수의 결정결함은 결과적으로 그림 4의 XRD 회절패턴에서 AlN 박막의 결정성에 변화를 초래하였고 심한 경우 주상구조 및 다결정질

로 성장하게 하는 것으로 보인다. 삽입된 회절패턴은 각각 AlN/Si 계면에서 동시에 두 개의 층에 대해 회절패턴을 얻은 사진으로써 AlN 층과 Si 층이 서로 에피택셜 방향성을 가지고 있으며 그 방향성은 각각 $\text{AlN}(0001)/\text{Si}(111)$, $\text{AlN}(1\bar{1}00)/\text{Si}(110)$ 및 $\text{AlN}(11\bar{2}0)/\text{Si}(112)$ 에 해당하였다. 그림 5(b)는 동일한 시편의 평면관찰 TEM 사진으로 결정입계가 관찰되지 않으며 단면관찰 사진에서 나타났던 결정결함의 경계면에 해당하는 부분이 미세한 공간을 가지는 간극으로 나타나는 것을 볼 수 있다. 이 미세간극은 전 부분에 고르게 분포하고있으며 AlN 박막의 내부 응력을 완충시켜 단결정성을 유지하고 있는 원인인 것으로 판단된다.

4. 결론

Si(100)과 Si(111)기판 위에 850°C 이상의 온도에서 AlN를 성장시켰을 때 각각 계면에 대하여 $[0002]$ 방향에 우선배향 성장을 한 것으로 나타났고, 특히 Si(111)기판에서는 AlN가 단결정으로 성장되었으나 고온에서 결정성의 변형이 미세하게 관찰되었다. 그 원인으로서는 안정적인 결정성을 유지하기 위해 내부의 원자이동에 따라 변형이 일어나는 것으로 해석되었다. Si(111) 기판 위의 AlN 박막에서는 결정입계는 관찰되지 않았고 주상구조의 방향으로 미세한 간극이 형성되어 내부응력을 흡수하고 단결정을 유지하는 것으로 판단되었다.

참고문헌

- [1] S. Strite and H. Morcoc, J. Vac. Sci. Tech. B 10, 1237 (1992)
- [2] H. Okano, N. Tanaka, K. Shibata, and S. Nakano, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 32, 4052 (1993)
- [3] H. Okano, Y. Takahashi, T. Tanaka, K. Shibata, and S. Nakano, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 31, 3446 (1992)
- [4] W.J. Meng and T.A. Perry, J. Appl. Phys. 76, 7824 (1994)
- [5] G.W. Auner, F. Jin, V.M. Naik, and R. Naik, J. Appl. Phys. 85, 11, 7879 (1999)