

論文93-30A-6-5

순차 증착한 InSb 박막의 전자 이동도 향상을 위한 대용융 재결정에 관한 연구

(A Study on the Zone Melting Recrystallization of Sequentially Evaporated InSb Thin Films for Improvement of the Electron Mobility)

金炳鈞*, 玄圭澤**, 朱承基**

(Byung Yoon Kim, Kyu Taek Hyun, and Seung Ki Joo)

要約

순차 증착한 In/Sb 다층막을 대용융 재결정하여 InSb 박막을 형성하였다. 미반응 금속상 또는 분산된 금속 석출물은 박막의 전자 이동도를 감소시켰으며 InSb (111) 우선 방위가 발달할수록 높은 전자 이동도를 보였다. 재결정 시 최고 온도와 주사 속도를 변화시켜 박막의 성질을 제어할 수 있었으며, 최적 조건에서 $12,000 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$ 의 높은 전자 이동도를 가지는 InSb 박막을 얻었다.

Abstract

InSb thin films were fabricated by zone melting recrystallization of In/Sb multilayered thin films prepared by sequential evaporation. Unreacted metal phase or dispersed metal precipitates lowered the electron mobility and the electron mobility increased with development of (111) preferred orientation. Properties of the film could be controlled by changing maximum temperature and scanning speed, and the electron mobility as high as $12,000 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$ could be obtained under the optimized conditions

1. 서론

Hall 소자는 외부 자장의 세기에 비례하는 출력 전압을 나타내는 자기 센서로서 최근 직류 브러쉬리스 모터 및 Hall probe 등에 사용되는 것으로 그 수요가 급증 추세에 있다. Hall 효과는 재료의 반송자 이동도에 비례하고 전도판의 두께에 반비례하기 때문에

고감도, 고출력의 센서를 만들기 위해서는 큰 반송자 이동도의 재료를 박막 형태로 가공해야 한다. 따라서 전자 이동도가 매우 큰 InSb 및 InAs 등의 화합물 반도체가 발견된 이후 박막 가공 방법의 개발에 많은 노력이 집중되고 있다. 특히 InSb는 단결정의 경우 $78,000 \text{ cm}^2/\text{Vsec}$ 로 가장 큰 전자 이동도를 가지므로 이 재료의 박막 가공에 대한 많은 연구 결과가 발표되고 있다.^[1,2]

InSb과 같은 III-V 화합물 반도체는 두 성분 원소의 증기압이 현저히 다르기 때문에 일반적인 열증착 방식으로는 박막 형성이 불가능하며^[2] 따라서 삼온도법 (three temperature method), 플래시 증착법 (flash evaporation) 등의 특수한 열증착 방법을

*準會員, **正會員, 서울大學校 金屬工學科
(Dept. of Metallurgical Eng., Seoul Nat'l Univ.)

接受日字: 1992年 11月 23日

이용한 박막 형성이 보고된 바 있다.^[3,5] 또한, 최근 들어 GaAs 등의 기판에 MOMS (Metal Organic Magnetron Sputtering), MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition), MBE (Molecular Beam Epitaxy) 등에 의한 에피택셜 성장 (epitaxial growth)에 관한 연구도 활발히 진행되고 있다.^[6,11]

그러나 삼온도법이나 플래시 증착법은 복잡한 공정과 장치에도 불구하고 좋은 성질의 박막을 얻기가 힘들고 MOMS, MOCVD 및 MBE 등은 비교적 양질의 막을 얻을 수는 있으나 생산성이 열악하고 개별 소자를 제작함에 있어 매우 불리하다는 단점이 있다.

본 연구에서는 열증착 장치를 이용하여 In과 Sb를 순차적으로 증착한 이중 구조의 박막을 대용융 재결정 (ZMR, Zone Melting Recrystallization) 법^[12-17]을 이용하여 액상 재결정화 함으로써 InSb 화합물 박막을 얻고자 하였다. (그림 1 참조) 특히 대용융 재결정 시 우선 방위의 형성 및 전자 이동도에 대해 집중 분석하였다.

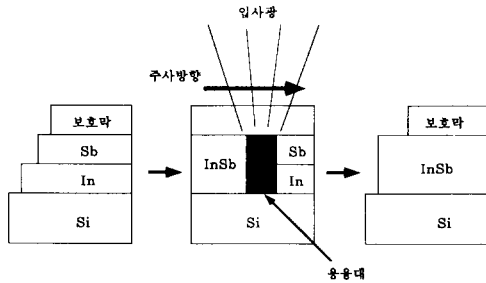


그림 1. 대용융 재결정법
Fig. 1. Zone melting recrystallization method.

II. 실험 방법

순차 증착은 (100) Si 웨이퍼를 기판으로 하여 약 5000 Å 정도의 실리콘 열산화막을 형성한 뒤, 독립적으로 제어할 수 있는 2개의 보트를 이용하여 수정 발진 두께 감시기로 증착막의 두께를 감시하면서 3500 Å의 In과 Sb를 순차적으로 증착하였다. 또 재결정 과정 중에 Sb의 증발과 액상막의 응집을 방지하기 위하여^[16,17,18,19] 고주파 스퍼터링 방법에 의하여 SiO₂ 보호막을 3000 Å 형성하였다.

이와 같이 형성한 다층막을 질소 분위기로 유지된 석영관 속에 장입하고, 할로겐 램프를 복사 열원으로 하여 타원형 반사경으로 시편에 집중시켜 국부적인

용융대를 형성하였으며, 박막을 일방향 응고시키기 위해 석영관을 일정한 속도로 이동시켰다.

주사 전력과 주사 속도를 변화시키면서 대용융 재결정하여, X-선 회절 분석 (XRD) 으로 재결정된 시편의 성분과 구조를 조사하였다. 또한 전기적 특성을 분석하기 위해 ASTM 규격의 six-bridge type의 Hall 측정용 패턴^[18,20]으로 박막을 제작하였으며, 10 mA의 일정한 전류를 흘려주면서 3 kG의 영구 자석으로 자장을 가하여 반송자의 이동도 및 전자 농도, 비저항 등을 조사하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

1. 대용융 재결정 시 최고 온도의 영향

그림 2는 0.05 mm/sec의 주사 속도에서 최고 온도에 따른 전자 이동도의 변화를 나타낸 것으로 600 °C 근처에서 약 10,000 cm²/Vsec의 최고치를 보였다.

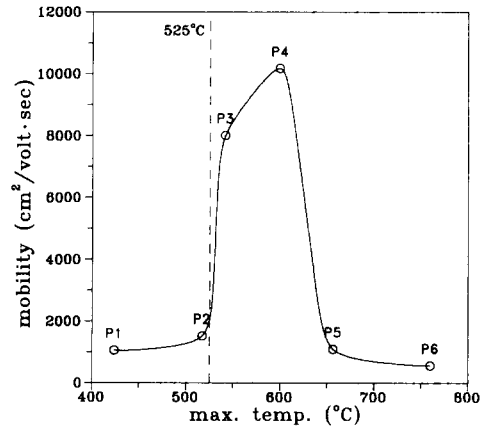


그림 2. 최고 온도에 따른 전자 이동도의 변화 (주사속도 = 0.05 mm/sec)

Fig. 2. Variation of electron mobility with respect to maximum temperature (scanning speed = 0.05mm/sec).

그림 2의 각 시편들의 비저항과 전자 농도를 그림 3에 나타내었다. 전자 농도는 낮은 온도에서는 약 10¹⁷ cm⁻³으로 비교적 일정하게 유지되었고, 600°C 이상의 온도에서는 온도에 따라 급격히 증가하였다. 그러나 박막의 비저항은 최고 온도가 증가함에 따라 급격히 감소하였고, 약 550°C 이상의 온도에서는 큰 변화를 보이지 않았다.

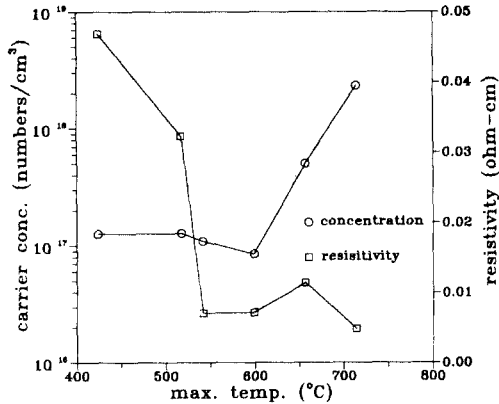


그림 3. 최고 온도에 따른 전자 농도와 비저항의 변화

Fig. 3. Variation of electron concentration and resistivity with respect to maximum temperature.

그림 4에는 그림 2의 P1, P4, P6의 시편의 X선 회절 분석 결과를 나타내었다. P1 시편의 경우 InSb의 피크와 함께 금속상 In과 Sb이 나타났으나, P4, P6의 경우에는 InSb와 과잉의 Sb상만이 존재하는 것으로 나타났다. 특히 전자 이동도가 크게 나타난 P4 시편의 경우에는 InSb (111)이 매우 크게 나타나고 (111)과 (511)면 이외의 다른 회절면은 관찰되지 않았다. 그림 5에는 최고 온도에 따른 InSb (111)면의 집합 조직 계수의 변화를 나타낸 것으로 전자 이동도와 매우 유사한 경향을 보였다.

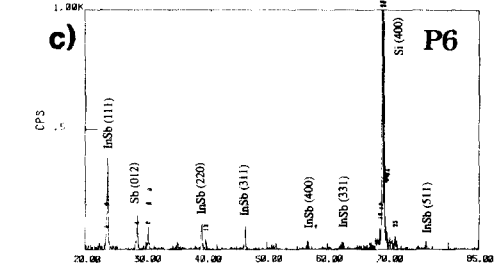
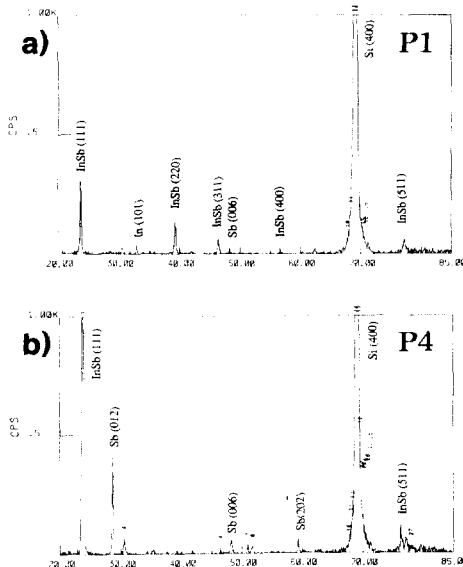


그림 4. X-선 회절 분석 패턴
a)P1, b)P4, c)P6

Fig. 4. X-ray diffraction patterns.
a)P1, b)P4, c)P6

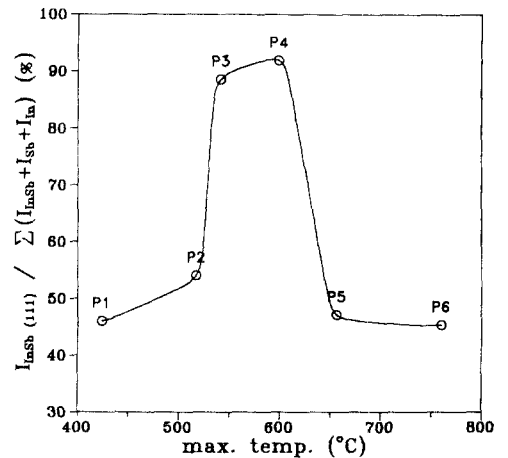


그림 5. 최고 온도에 따른 집합 조직 계수의 변화
Fig. 5. Variation of texture coefficient with respect to maximum temperature.

In-Sb계 상태를 보면 (그림 6 참조) 고상의 다층막이 157°C 이상으로 가열되면 In이 용융되고 액상의 In에 고상의 Sb이 그 용해한까지 용해되며, InSb의 융점인 525°C 이상의 온도로 가열되면 균일한 액상막이 된다. 따라서 525°C 이하의 온도에서 재결정된 경우 반응하지 못한 Sb과 함께 재결정된 InSb와 과잉의 In상이 공존하는 조직이 나타난다. 그러나 525°C 이상의 온도로 재결정될 경우에는 정확한 화학양론비의 조성이면 InSb만이 얻어지고, 약간 조성이 맞지 않으면 InSb와 한 종류의 과잉 금속상이 존재한다.

대용량 재결정 시 최고 온도가 InSb의 융점인 525°C보다 낮은 P1 시편의 경우 충분한 화합물 반응이 일어나지 않았기 때문에 In과 Sb의 두 금속상이 모

두 포함되어 있는 것으로 나타났다. 따라서 낮은 온도에서 열처리한 시편의 전자 이동도가 작은 이유는 반응하지 못한 금속상이 InSb에 의해 형성된 Hall 전압을 단락시켜 작은 Hall 전압을 나타냈기 때문으로 생각할 수 있다. [17, 18, 19]

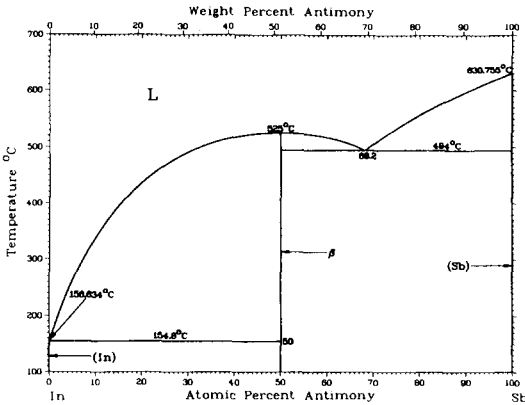


그림 6. In-Sb 계의 상태도 [21]
Fig. 6. Phase diagram of In-Sb system.

재결정 온도에 따라 전자 이동도가 증가하는 것은 전자 농도가 크게 변화하지 않고 비저항이 감소한 것으로 보아 (111) 우선 방위 성장에 의해 InSb 박막 자체의 성질이 개선되었기 때문으로 생각된다. [16, 19, 22, 23] 특히 전자 이동도가 매우 높은 P4 시편의 경우 완전한 (111) 우선 방위를 보이고 있는데, 이는 다이아몬드 구조 또는 Zinc-Blende 구조의 우선 성장 방위가 <110>, <211> 등의 (111)면에 수직인 방향임을 고려할 때 [16, 24, 25] 대용용 재결정 시 결정 성장이 주로 주사 방향으로 이루어졌음을 알 수 있다.

주사방향으로의 결정 성장이 일어나면 InSb 결정립 사이에 석출되는 과잉의 금속상들이 주사방향으로 정렬하게 되고, 이 석출된 금속상들은 단락 회로를 형성하지 않아 Hall 전압을 감소시키지 않는다. 따라서 적절한 온도로 대용용 재결정한 경우에는 (111) 우선 방위의 발달과 함께 높은 전자이동도가 나타난 것으로 생각 된다. 이에 반하여 결정 성장이 주사방향으로 국한되지 않은 경우는 과잉 금속상의 석출이 임의의 방향으로 일어나고 금속상에 의한 단락이 심화되어 Hall 전압의 감소가 나타난다. [17, 19] (식 1, 식 2 참조) 이와 같은 원인에 의해서 높은 온도로 재결정한 박막의 경우는 우선 방위가 소멸함에 따라 전자 농도의 증가와 전자 이동도의 감소가 나타난다고 생각할 수 있다.

$$n = \frac{I \cdot B}{q \cdot V_H \cdot t} \tag{식 1}$$

$$\mu = \frac{V_H}{V_s} \frac{L}{W} \frac{1}{B} \times 10^8 \tag{식 2}$$

- n : 전자 농도 (cm⁻³)
- B : 외부 자장의 세기 (Gauss)
- μ : 전자 이동도 (cm²/Vsec)
- t : 박막의 두께 (Å)
- V_H : Hall 전압 (V)
- L : 박막의 길이 (cm)
- V_s : 전원 전압 (V)
- W : 박막의 폭 (cm)
- I : 인가 전류 (A)

2. 대용용 재결정의 주사 속도의 영향

그림 7에 할로겐 램프의 인가 전압을 일정하게 유지시킨 경우 주사 속도에 따른 전자 이동도 변화를 나타내었다. 140V의 인가 전압에서는 0.1 mm/sec의 주사 속도에서 가장 큰 전자 이동도를 나타냈다. 그러나, 인가 전압이 115V나 155V인 경우에는 주사 속도에 관계 없이 전반적으로 낮은 전자 이동도를 보였다.

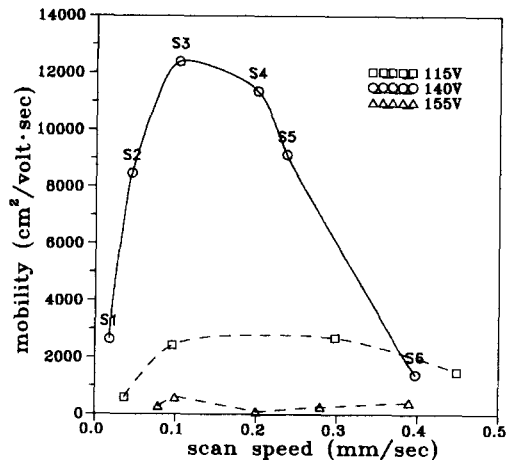


그림 7. 주사 속도에 따른 전자 이동도의 변화
Fig. 7. Variation of electron mobility with respect to scanning speed.

X-선 회절 분석 결과를 살펴보면, 115V의 경우는 모든 주사 속도에 대하여 화합물 반응이 일어나지 않은 것으로 나타났으며, 155V에서는 화합물 반응은 충분히 일어났으나, InSb (111) 우선 방위는 보이지 않았다. 이에 반하여 140V의 경우는 모든 주사 속도

에서 충분한 화합물 반응이 이루어져 InSb과 Sb만이 관찰되었으며 가장 높은 전자 이동도를 보인 S3 시편은 완전한 (111) 우선 방위를 나타내었다. 그림 8에 나타낸 그림 7의 각 시편들의 InSb (111) 집합 조직 계수는 전자 이동도와 유사한 경향을 나타내었다.

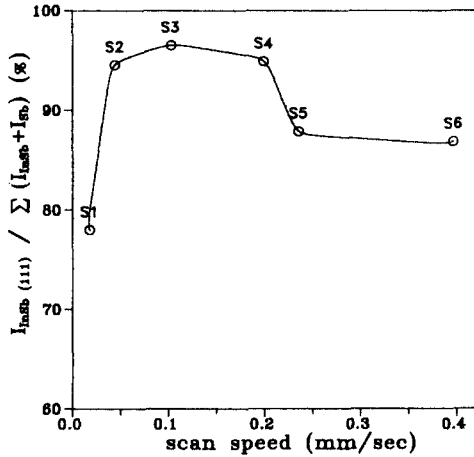


그림 8. 주사 속도에 따른 집합 조직 계수의 변화 (할로겐 램프 인가 전압 : 140V)

Fig. 8. Variation of texture coefficient with respect to scanning speed (halogen lamp voltage : 140V).

그림 9에는 동일한 온도에서 대용용 재결정으로 열처리한 경우와 노(furnace) 열처리한 경우의 X선 회절 분석 결과를 비교하여 나타내었다. 대용용 재결정의 경우 InSb (111)만이 나타나는 것에 반하여 노 열처리한 경우는 InSb의 다른 면들이 관찰 되었고, 전자 이동도는 각각 9,500cm²/Vsec와 3,500cm²/Vsec로 큰 차이를 나타냈다.

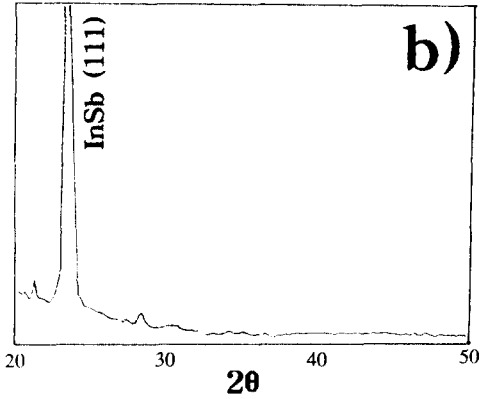
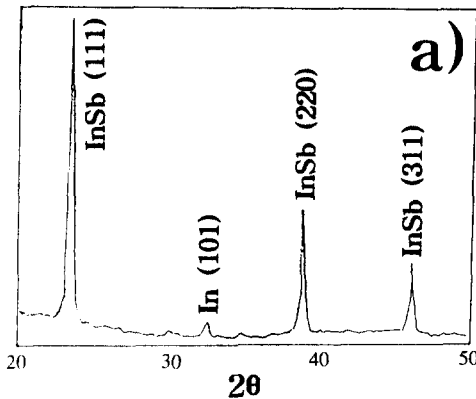


그림 9. 재결정 방법에 따른 X선 회절 분석 패턴 a)노 열처리 b)대용용 재결정

Fig. 9. X-ray diffraction patterns according to recrystallization method.

- a) furnace annealing
- b) zone melting recrystallization

따라서 전자 이동도는 InSb (111) 우선 방위가 발달 할 수록 크게 나타남을 알 수 있었으며, 대용용 재결정에 의한 액상 재결정법으로 우선방위의 정도와 전자 이동도를 향상 시킬 수 있었다.

IV. 결론

- 1) In과 Sb의 순차 증착으로 형성한 다층 박막을 대용용 재결정방법으로 재결정하여 12,000 cm²/Vsec의 전자 이동도를 가지는 InSb 박막을 형성하였다.
- 2) 미반응 금속상 또는 분산된 금속 석출물은 InSb 상에 형성되는 Hall 전압을 단락시켜 전자 이동도를 감소시켰다.
- 3) (111) 우선 방위가 발달할 수록 재결정된 InSb 박막의 전자 이동도는 증가하였다.

參考文獻

[1] 谷腰欣司, "磁氣 센サとそ使い方," 日本工業新聞社, 1986.

[2] H. Freller and K. G. Guenther, "Galvanomagnetic thin film devices," *The radio and electronic engineer*, pp. 97-107, Aug. 1967.

[2] E. B. Dale and G. Senecal, "Annealing

- effects in evaporated InSb films." *J. Appl. Phys.*, vol. 33, no. 8, pp. 2526-30, Aug. 1962.
- [4] J. F. Spivak and J. A. Carroll, "High-mobility InSb thin films by recrystallization," *J. Appl. Phys.*, vol. 36, pp. 2321-23, 1965.
- [5] H. H. Wieder, *Intermetallic semiconducting films, international series of monographs in semiconductors*, vol. 10, 1st ed., Pergamon Press, 1970.
- [6] J. B. Webb, C. Halpin and J. P. Noad, "The structural and compositional characterization of InSb films prepared by metalorganic magnetron sputtering." *J. Appl. Phys.*, vol. 60, pp. 2949-53, Oct. 1986.
- [7] J. E. Greene, C. E. Wickersham, "Structural and electrical characteristics of InSb thin films grown by rf sputtering." *J. Appl. Phys.*, vol. 47, pp. 3630-39, Aug. 1976.
- [8] J. C. Chen, P. Bush, W. K. Chen, Pao-Lo Liu, "Low-temperature heteroepitaxial growth of InSb on CdTe by metalorganic chemical vapor deposition," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 53, pp. 773-75, Aug. 1988.
- [9] G. M. Williams, C. R. Whitehouse, C. F. McConville, et al., "Heteroepitaxial growth of InSb on (100) GaAs using molecular beam epitaxy." *Appl. Phys. Lett.*, vol. 53, pp. 1189-91, Sep. 1988.
- [10] A. J. Noreika, M. H. Francombe, "Growth of Sb and InSb by molecular-beam epitaxy." *J. Appl. Phys.*, vol. 52, pp. 7416-20, Dec. 1981.
- [11] J. L. Davis, P. E. Thompson, "Molecular beam epitaxy growth of InSb films on GaAs," *J. Appl. Phys.*, vol. 54, pp. 2235-37, May 1989.
- [12] J. C. C. Fan, B-Y. Tsaur, M. W. Geis, *J. Crystal Growth*, vol. 63, p. 453, 1983.
- [13] G. E. Possin, H. G. Darks, S. W. Chiang, Y. S. Liu, *IEEE Trans. Elect. Dev.*, Ed-31, p. 68, 1984.
- [14] J. F. Gibbons, K. F. Lee, T. J. Magee, J. Peng, R. Ormond, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 34, p. 831, 1979.
- [15] S. S. Lau, W. F. Tseng, M-A. Nicolet, J. W. Mayer, R. C. Eckardt, R. J. Wagner, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 33, p. 130, 1978.
- [16] C. C. Wong, C. J. Keavney, H. A. Atwater, C. V. Thompson, H. I. Smith, "Zone melting recrystallization of InSb films on oxidized Si wafers." *Mat. Res. Soc. Symp. Proceeding*, vol. 23, pp. 627-32, 1984.
- [17] M. Isai, M. Ohshita, "Magnetically sensitive InSb films prepared on SiO layers using hot-wire recrystallization." *J. Appl. Phys.*, vol. 58, pp. 2686-90, Oct. 1985.
- [18] 전유찬, 주승기, 이승기, 윤종만, 한민구, "순차적열증착에 의한 InSb 박막 형성에 관한 연구." 전자 공학회 논문지-A, 제28권, A편, 제6호, pp. 52-58, 1991.
- [19] S. Iida, "Effect of recrystallization conditions on linearity of Hall output voltage of an InSb element." *J. Appl. Phys.*, vol. 65, pp. 1977-81, Mar. 1989.
- [20] "Standard method for measuring Hall coefficient in extrinsic semiconductor single crystals." *ASTM book of standard*, pp. 76-84, 1984.
- [21] T. B. Massalski, *Binary alloy phase diagrams*, Vol. 2, American society for metals, 1986.
- [22] M. Isai, M. Ohshita, "Crystal growth investigation of the magnetically highly sensitive InSb evaporated films." *J. Appl. Phys.*, vol. 55, pp. 941-45, Feb. 1984.
- [23] H. Okimura, T. Matsumae, M. Ohshita, "Dendritic crystal regrowth and electrical properties of InSb thin films prepared by vacuum evaporation." *J. Appl. Phys.*, vol. 66, pp. 4252-57, Nov. 1989.
- [24] E. Billing, *J. Inst. Metals*, vol. 82, p.

1565, 1954.
[25] G. F. Bolling, W. A. Tiller, J. W.

Rutter, *Can. J. Phys.*, vol. 34, p. 234, 1956.

著者紹介



金炳鉞(準會員)
1969年 4月 2日生. 1991年 서울대학교 금속공학과 졸업. 1993년 서울대학교 금속공학과 석사 학위 취득. 현재 서울대학교 금속공학과 박사 과정 재학중. 주관심분야는 센서 및 ULSI용 metal

CVD.

玄圭澤(正會員)
1965年 2月 21日生. 1987年 서울대학교 금속공학과 졸업. 1989年 서울대학교 금속공학과 석사 학위 취득. 현재 서울대학교 금속공학과 박사 과정 재학중. 주관심분야는 자기 센서 등.

朱承基(正會員) 第 28卷 A編 3號 參照
현재 서울대학교 금속공학과 부교수.