

GaAs 기울임입계 및 이차입계전위구조

조 남 희

인하대학교 무기재료공학과, 인천광역시 남구 용현동 253

Structural Investigation of GaAs Tilt Grain Boundaries and Secondary Boundary Dislocations

N.-H. Cho

Department of Ceramic Engineering, Inha University, Namgu, Incheon, Korea

요 약

GaAs $\Sigma=19, \{331\}/\{331\} [110]$ 과 $\Sigma=3, \{111\}/\{111\} [110]$ 기울임입계의 구조적 특징을 분해투과전자 현미경을 이용하여 분석하였다. 이 입계들은 격자일치점의 면밀도가 높은 결정면을 형성하고 있으며, 특정한 원자배열단위를 나타낸다. 입계에서 관측된 이차입계전위들의 코어 직경은 약 2 nm 정도이며 이들이 놓인 입계부분에서 입계계단이 생성된다. 이들 입계계단과 이차입계전위의 상관관계를 DSC 격자를 이용하여 고찰하였다.

Abstract

The atomic configurations of GaAs $\Sigma=19, \{331\}/\{331\} [110]$ and $\Sigma=3, \{111\}/\{111\} [110]$ tilt grain boundaries were investigated by HRTEM (High-resolution Transmission Electron Microscopy). The boundary planes lie parallel to the crystallographic planes with high number density of coincident lattice sites for given misorientations, exhibiting particular atomic structural units. Secondary boundary dislocations with a core diameter of about 2nm were observed at boundary steps when a slight deviation from exact Σ -related misorientations occurs in the bicrystal system. The relation between the secondary boundary dislocation and the boundary step was discussed based on a DSC lattice model.

1. 서 론

세라믹이나 금속재료의 입계구조가 이들 재료의 기계적 특성과 열처리확산에 중요한 영향을 주어 이에 대한 연구가 지난 20여년간 많이 행하여졌으며, 최근에는 전자산업계의 반도체재료 사용증가에 따라 반도체재료 입계의 전기적

특성에 관한 연구가 크게 증가하고 있다. 특히 입계확산 또는 입계전자활성도 등이 입계의 원자구조와 긴밀한 연관성을 갖고 있어, 입계의 정밀한 원자구조에 많은 관심이 모아지고 있다.¹⁻⁴⁾

Kronberg, Brandon 등에 의해 입계면 및 입계구조를 설명하기 위해 제안된 CSL(Coincidence Site Lattice) 모델에 의하면, 서로 다른

방향성을 갖는 두 결정 사이에 생성되는 입계는 두 결정이 갖는 교차각에서 격자일치점의 면밀도가 높은 결정면에 평행하게 놓인다.⁵⁻⁸⁾ 즉 특정한 Σ 값에 해당하는 교차각에서 입계면은 낮은 에너지를 갖도록 특정한 결정방향을 나타내며, 또한 입계면에서의 원자배열들은 일정한 규칙성을 보이게 된다. 특정한 입계를 구성하는 원자구조단위는 입계의 결정면, 국부적인 이완(local relaxation), 그리고 입자의 이동(rigid-body translation)등에 의해서 입계가 가능한 낮은 에너지를 갖도록 생성된다고 여겨진다.⁹⁻¹¹⁾

입계양쪽의 입자들 사이에 존재하는 교차각이 특정한 Σ 값에 관한 교차각으로 부터 매우 작은 정도($<10^\circ$)의 이탈이 존재할 경우에는 정확한 Σ 값에 상관된 입계구조는 일정한 변화를 나타내리라 여겨지며 이에 관한 다양한 연구결과들이 보고되고 있다. 특히 일정한 교차각에 상관된 구조단위를 유지하면서, 이탈에 해당하는 일정한 전위망(dislocation network)이 입계를 따라서 발생될때 이러한 전위를 이차입계전위(secondary boundary dislocation)라 하며 이들 이차전위의 Burgers 벡터가 입계면에 존재하는 양태에 관한 연구들이 일부 연구구룹에 의해 보고되었다.¹²⁻¹⁵⁾

이차입계전위들의 Burgers 벡터는 흔히 격자전위보다 작은 크기를 갖지만 높은 지수를 보이며, DSC(Displacement-shift Complete) 격자에 기초하여 입계계단 및 이차입계전위의 규명이 시도되고 있다.^{16,17)} 실험적으로 이들 전위들을 분석하기 위하여 약암시야상 기법이나 입계에서의 원자배열 분석능력이 뛰어난 고분해투과전자현미경(HRTEM)이 긴요하게 이용된다. 특히 입계에 접하는 두 개의 입자가 상호간에 갖는 특정한 방향성으로 부터의 이탈에 따르는 입계구조의 변화를 고분해투과전자현미경에 의해 원자단위에서 상으로서 만들 수 있으므로, HRTEM은 이차입계전위 코어 구조와 입계계단과의 상관관계들을 밝히는데 매우 유익하게 사용될 수 있다.

본 연구에서는 이차입계전위, 격자전위와 입계의 상호작용, 그리고 이에 따른 입계구조의 변화에 대한 이해를 증가시키기 위하여, $\Sigma=19$ 와 $\Sigma=3$ 에 상관된 GaAs 기울입입계의 이차전위 및 입계계단에 대한 구조를 DSC 격자를 이용하여 분석하였다.

2. 실험방법

Czochralski법을 이용하여 제조된 (110)Ge bicrystal 기판 위에 OMVPE(Organo-Metallic Vapor Phase Epitaxy) 기법을 이용하여 $1\mu\text{m}$ 두께 GaAs 박막을 제작하였다. 이 과정에서 Ge bicrystal 기판이 갖는 $\Sigma=19$ 에 상관된 교차각이 GaAs 박막에 재생되도록 하였으며, 이 GaAs 박막내에는 Ge 기판으로 부터 재생된 입계뿐만아니라 마이크로 쌍정들이 많이 존재하였다. TEM 시편을 만들고자 직경이 3mm인 디스크를 입계부근에서 입계가 포함되도록 떼어냈으며, 이 디스크를 박막과 기판전체두께가 $100\mu\text{m}$ 정도가 되도록 Ge 기판쪽을 갈아낸후 딥플러를 사용하여 입계근처의 두께가 $10\mu\text{m}$ 정도가 되도록 하였다. 4kV Ar⁺ 이온빔을 사용하여 Ge 기판쪽을 이온밀링하였다.

JEOL 4000EX를 가속전압 400kV에서 작동시켜 입계에서 회절패턴 및 위상콘트라스트등을 얻었다. 전자현미경 대물렌즈의 구면수차는 1.0mm이다. 입계로 부터 위상콘트라스트를 얻을 때는 입계 양쪽 입자들로 부터 생성된 $\langle 111 \rangle$ 과 $\langle 220 \rangle$ 회절범들의 전자밀도가 투과빔에 대해서 균일하도록 하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1 $\Sigma=19$ 기울입 입계

Fig. 1은 $\Sigma=19$, $(\bar{3}\bar{3}\bar{1})_A/(\bar{3}\bar{3}\bar{1})_B[110]$ 기울입입계로 부터 기록된 고분해 투과전자현미경 사진이다. 입계 양쪽의 입자들에서 나타나는 밝은 점들은 입계에 대하여 대칭적인 배열을 나타내

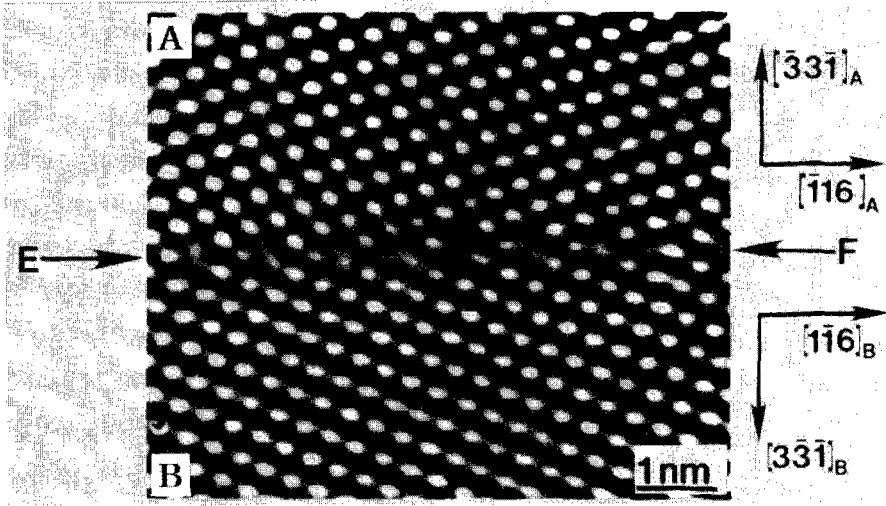


Fig. 1 High-resolution micrograph of a $\Sigma=19$, $(\bar{3}\bar{3}1)_A/(331)_B$ [110] tilt grain boundary.

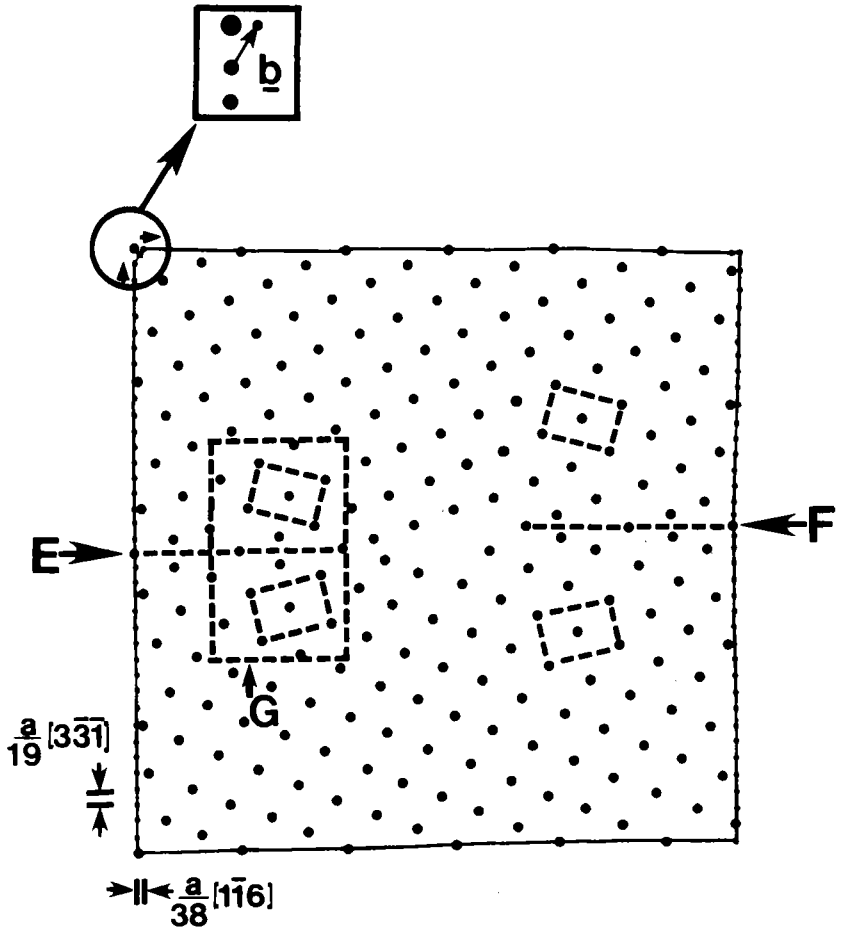
Bright spots are seen symmetric across the boundary, and a step is shown between the two boundary segments indicated by arrows E and F.

며, 입계에서는 밝은 점들의 규칙적인 배열이 보인다. 각각의 입자 A와 B에서의 극성은 CBED(Convergent Beam Electron Diffraction) 기법에 의하여 확인되었으며,^{18,19)} 입계영역으로부터 기록된 회절패턴에 의하면 입계 양쪽의 두 입자들 간의 교차각은 28°로 나타났다. 따라서 극성을 고려한 두 입자간의 교차각은 정확한 $\Sigma=19$, [110]으로 부터 1.5° 정도 이탈됨이 파악되었다. 화살표 E와 F로 나타낸 입계들 사이에 조그만 입계계단이 보이며 반복되는 입계 원자구조가 입계계단에서는 변화됨을 보인다.

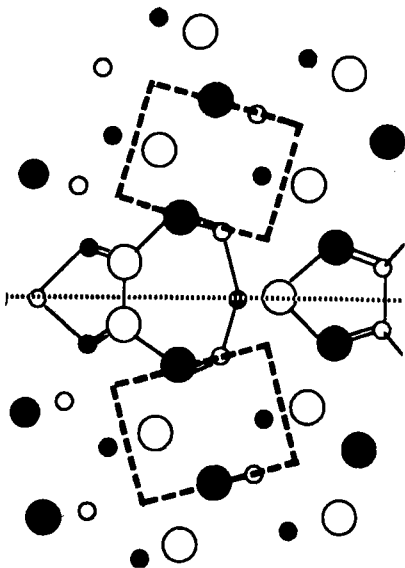
Fig. 1에 보인 입계계단 주위에 DSC격자를 기준격자로 사용하여 Burgers circuit을 만들었다(Fig. 2a). 이 그림에서 이차입계전위 Burgers 벡터 b 는 $a/38[1\bar{1}6]_B - a/19[3\bar{3}1]_B$ 이며, 입계계단의 크기는 $|2a/19[331]_B|$ 이다. Fig. 2(b)는 (a)의 G에 해당하는 부분의 원자배열을 보여준다. 입계에서는 5-, 7-, 그리고 6-모서리링들로 구성된 단위구조가 반복되어 있으며, 일부의 입계간 결합이 anti-site 결합에 해당됨을 알 수 있다. 화살표 E로 표시된 입계의 원자구조는 F

로 표시된 입계의 원자구조와 동일하며, 입계계단에 의해 입계면의 위치는 변하지만 원자구조는 변하지 않음을 볼 수 있다. 즉 이차입계전위의 코어는 매우 국부적으로 존재하며, 이 부분에서 원자충진밀도가 정상적인 결정영역보다 낮으며 원자간의 결합각도 및 거리도 변화되리라 여겨진다. 한편 이러한 이차입계전위의 존재는 입계의 다른 부분에 구조적인 영향을 거의 주지 않는다.

Fig. 3은 $\Sigma=19$, [110] fcc의 DSC 격자이다. 주어진 $\Sigma=19$ 에 상관된 교차각에서 두 입자 A와 B의 격자들의 일치점은 이중등심원으로 표시되어 있으며, 결정면 $(\bar{3}\bar{3}1)_A/(331)_B$ 에서 가장 높은 격자일치점 면밀도를 볼 수 있다. 앞의 $\Sigma=19$, $(\bar{3}\bar{3}1)_A/(331)_B$ [110] 입계에서 관측된 이차입계전위의 Burgers 벡터는 Fig. 3에서 조그만 화살표로 표시되어 있다. 이 화살표로 나타낸 벡터만큼 작은 원으로 표시된 격자가 이동하면 격자일치점의 최고밀도를 나타내는 면이 $|2a/19[331]_B|$ 만큼 입계면에 수직방향으로 이동함을 볼 수 있다. 이 높이는 실험적으로 관



A



B

Fig. 2 (a) Lattice sites of grains A and B shown in Fig. 1a are represented by dark dots.

A Burgers circuit is drawn around the observed step. The reference lattice for this circuit is a DSC lattice corresponding to $\Sigma=19$, [110] coincidence.

(b) Atomic arrangement in the area indicated by G in (a) is illustrated. Open and closed circles represent Ga and As atomic sites. The difference in size indicates two different heights along the [110] axis.

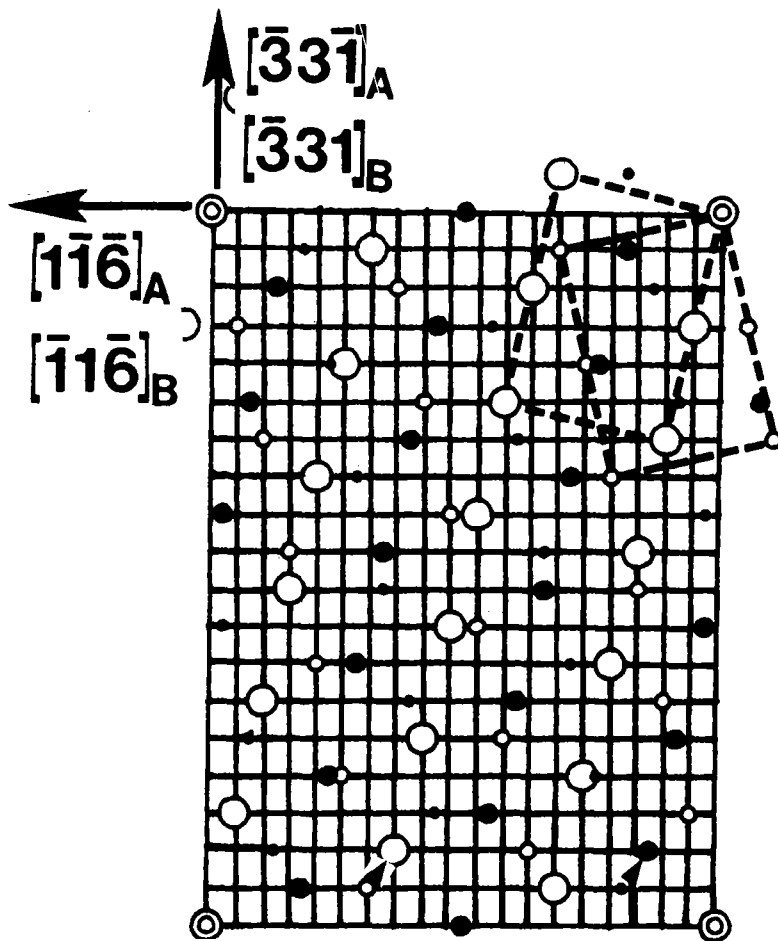


Fig. 3 $[110]$ projection of two fcc lattices. The lattices are rotated into $\Sigma=19$ coincidence orientation. The Burgers vector of the observed secondary boundary dislocation in Fig. 2a is indicated by arrows.

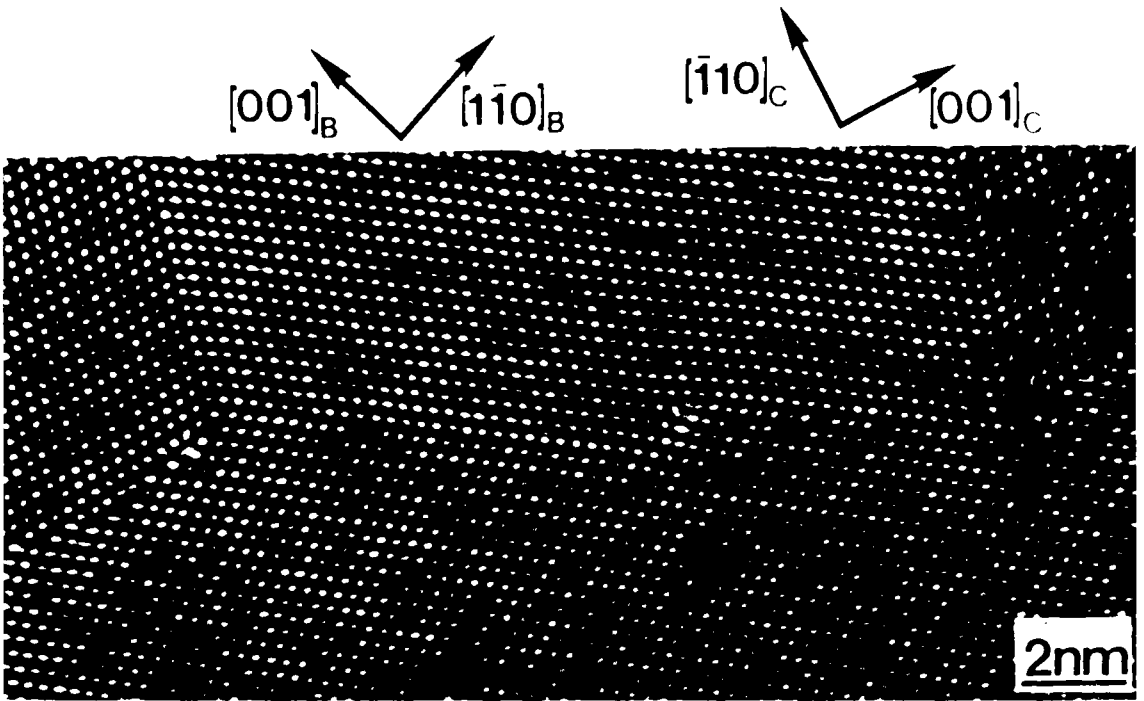
측된 입계계단의 크기와 잘 일치한다.

3-2 $\Sigma=3$ 기울임 입계

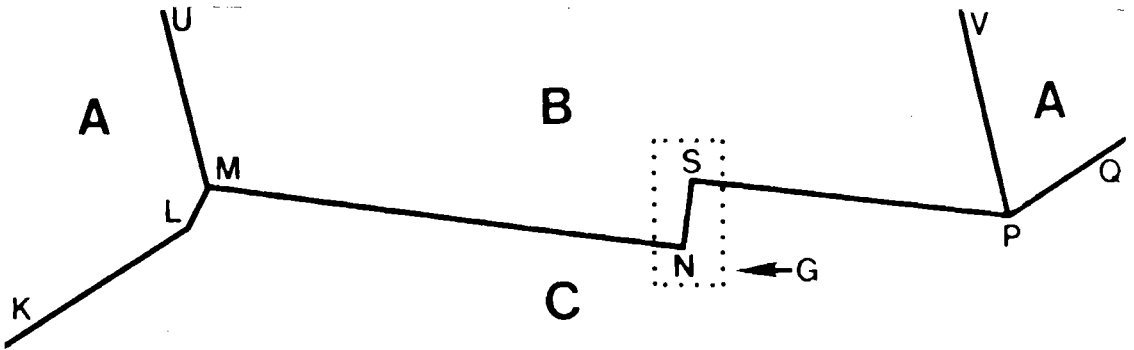
Fig. 4(a)는 $\Sigma=9$ 와 $\Sigma=3$ 기울임입계들을 포함하는 마이크로쌍정으로 부터 기록된 고분해 투과전자현미경 사진이다. UM, VP, MN, 그리고 SP를 따라서 $\Sigma=3$ $\{111\}/\{111\}$ 기울임 입계가 보이며, 이들 입계들이 상호작용하여 MK와 PQ에 $\Sigma=9$ 기울임입계들이 나타난다. N과 S 사이에 입계계단이 보이며 Fig. 4(c)는 입계계단

부근을 확대한 것이다. 입계거울면은 밝은 점들이 연속적으로 배열되어 있으며 화살표 E로 표시된 입계거울면이 화살표 F로 표시된 입계거울면으로 입계계단을 통해서 이동함을 볼 수 있으며 입계계단에서 전위코어 및 이에 따른 격자왜곡이 국부적으로 농임을 볼 수 있다.

Fig. 4(c)에서 보인 입계계단 주위에 여분의 $\{111\}$ 격자면이 관측된다. 이 고분해투과전자현미경 사진에서 밝은 점들은 동일한 사진내의 $\{111\}/\{111\}$ 쌍정입계의 콘트라스트로 부터



(a)



(b)

Fig. 4 (a) High-resolution micrograph of an area containing $\Sigma=9$ and $\Sigma=3$ related tilt grain boundaries. A step is shown between S and N.

(b) Schematic of the high-resolution micrograph shown in (a).

(c) High-resolution image enlarged from the area indicated by G in (a).

$\Sigma=3$, $\{111\}/\{111\}$ boundaries are seen along the planes indicated by arrows E and F.

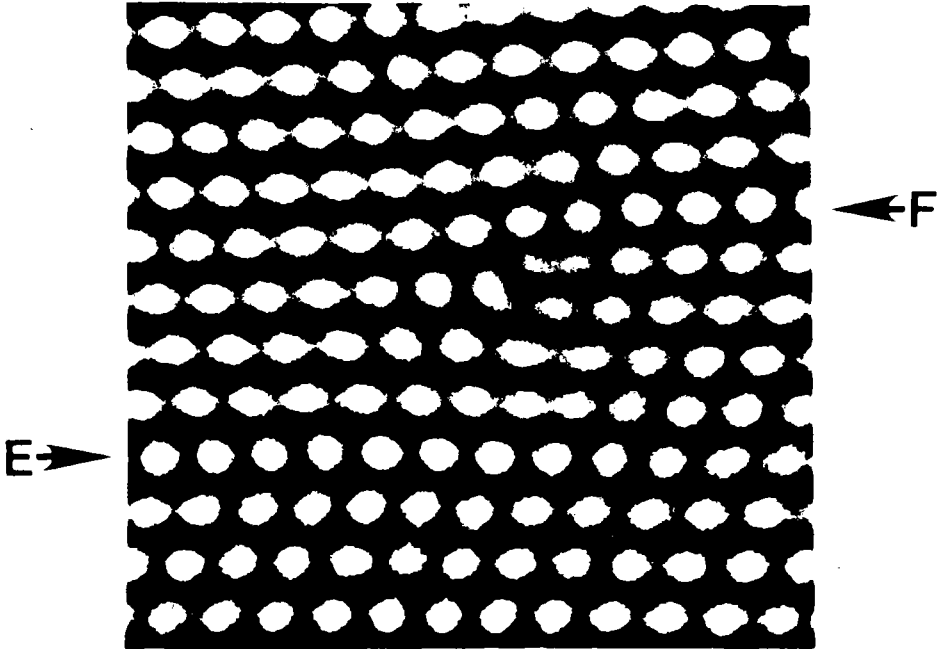


Fig. 4 (c)

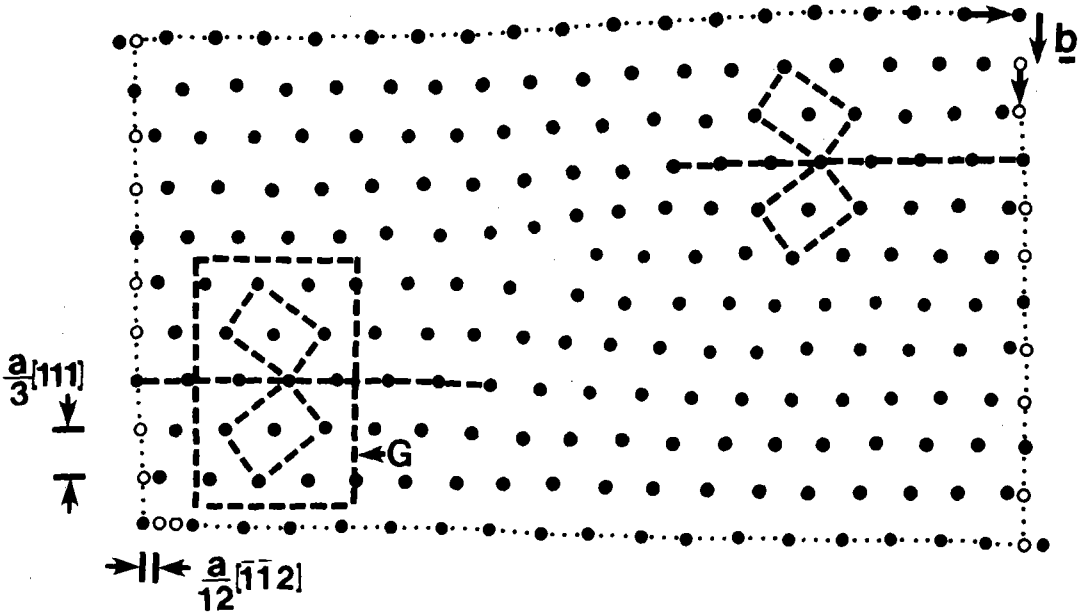
$\langle 110 \rangle$ GaAs 투영에서 원자컬럼들 사이의 채널에 해당하며, 어두운 부분들은 Ga-As컬럼에 상관됨을 알 수 있다: 이들 Ga과 As 컬럼은 $\langle 110 \rangle$ 투영에서 상호간에 0.05nm 정도 떨어져 있다. 따라서 한 유형의 점들은 하나의 격자점으로 여겨질 수 있다. Fig. 5에는 Fig. 4에서 보인 입계계단을 포함한 영역주위의 결정격자에서 Burgers circuit를 나타내었다. 이 이차입계전위의 Burgers 벡터 크기는 $1a/3[111]I$ 이며, Fig. 5(a)에서 b로 나타나 있다. 이 벡터의 존재에 기인하여 입계 한 쪽 입자의 다른 한 쪽 입자에 대하여 나타내는 격자이동은 가장 높은 격자일치점 밀도를 나타내는 면을 입계계단의 크기인 $14a/3[111]I$ 만큼 이동시키게 된다. 이는, 격자이동에 관한 기하적인 측면에서, 격자전위가 입계와 상호작용이 되어있음을 보인다.

Fig. 5(b)는 Fig. 5(a)에서 G로 나타난 부분의 각 격자점에 대해서, 입자의 극성과 쌍정거울면의 콘트라스트를 고려하여, 원자컬럼들을 부여하여 원자배열을 나타냈다.³⁰⁾ 이 과정에서

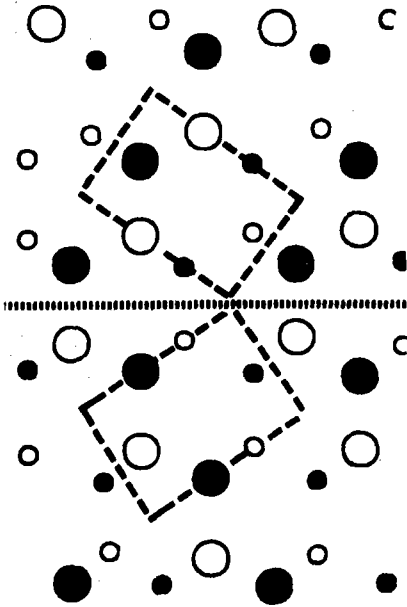
회전교차각은 $\langle 110 \rangle$ 축을 중심으로 250.5° 를 적용하였다. 검은 원과 밝은 원은 각각 서로 다른 종류의 원자컬럼(Ga, As)을 표시하며 원의 크고 작음은 $\langle 110 \rangle$ 축방향에 평행한 서로 다른 두 위치를 나타낸다. Fig. 5(b)에서 입계의 원자구조단위를 볼 수 있으며 이러한 단위는 입계전위의 존재에 의하여 변하지 않음을 알 수 있다. $\Sigma=3 \{111\}/\{111\}$ 쌍정입계는 대칭적인 6-모서리 링으로 구성되어 있으며, 이러한 단위의 배열은 정상적인 결합거리 및 방향에 비추어 격자왜곡이 매우 낮은 에너지를 갖게 되리라 여겨진다. 이러한 쌍정입계가 격자전위와 상호작용을 하면 입계구조의 변화는 입계전위 코어 부근에서 국부적으로 놓이며 결과적으로 입계계단이 생성됨을 알 수 있다.

4. 결 론

$\Sigma = 19$ 및 $\Sigma = 3$ GaAs 기울입계의 입계계단 및 이차입계전위를 고분해투과전자현미경



(a)



(b)

Fig. 5 (a) Lattice sites on either side of the boundaries MN and SP shown in Fig. 4a are represented by dark dots. A Burgers circuit is drawn around the step; a DSC lattice for $\Sigma=3$ misorientation is used as a reference lattice. The failure of this circuit indicates that the Burgers vector of a dislocation associated with the presence of the step is $a/3[111]$.

(b) Atomic arrangement in the area indicated by G in (a) is illustrated, Ga and As atomic sites are represented by open and closed circles; the difference in size indicates two different heights along the $[110]$ axis.

을 이용하여 실험적으로 관측하였으며, 이들의 상관관계를 DSC 격자를 이용하여 고찰하였다. $\Sigma=19$ 및 $\Sigma=3$ [110] GaAs 기울입계는 격자 일치점의 높은 밀도를 갖는 결정면에 평행하게 놓여 일정한 원자구조단위를 갖고 있다.

$\Sigma=19$, $\{331\}/\{331\}$ [110] GaAs 기울입계에서 $12a/19[331]$ I의 크기를 갖는 입계계단은 Burgers 벡터 $a/38[116]-a/19[331]$ 를 갖는 이차입계전위를 포함한다. $\Sigma=19$, [110] fcc 격자에 의해 구성된 DSC 격자에서, 한 격자를 이차입계전위의 Burgers 벡터만큼 이동시킬때 가장 높은 격자일치점 면밀도를 나타내는 면을 $12a/19[331]$ I 만큼 면에 수직방향으로 이동시키는 결과를 가져오며, 이는 실험적고찰과 잘 부합한다. 이차입계전위의 코어는 직경이 2nm 정도이며, 입계계단 외의 다른 부분에서는 $\Sigma=19$ 에 상관된 원자구조단위가 변하지 않고 존재한다.

$\Sigma=3$, $\{111\}/\{111\}$ [110] GaAs 기울입계가 격자전위와 상호작용을 하여 입계계단을 발생시키며, 이 전위의 Burgers 벡터는 $a/3\langle 111 \rangle$ 에 해당된다. 입계전위의 코어는 입계계단을 동반하여 매우 국부적으로 놓여 있으며 이들 영역 외의 입계에서는 $\Sigma=3$ 에 상관된 대칭적인 6-모서리링으로 구성된 입계의 원자구조를 유지한다.

5. 참 고 문 헌

1. S.L. Sass, T.Y. Tran, and R.W. Balluffi, *Phil. Mag.*, **A31**, 495 (1975).
2. C.B. Carter, H. Foll, D.G. Ast, and S.L. Sass, *Phil. Mag.*, **A43**, 441 (1981).
3. N.-H. Cho, B.C. DeCooman, and C.B. Carter, *Appl. Phys. Lett.*, **47**(8), 879 (1985).
4. O.L. Krivanek, S. Isoda, and K. Kobayashi, *Phil. Mag.*, **A36**, 331 (1977).
5. M.L. Kronberg, and F.H. Wilson, *Trans. AIME*, **185**, 501 (1949).
6. D.G. Brandon, *Acta Metall.*, **14**, 1479 (1966).
7. W. Bollmann, *Phil. Mag.*, **16**, 363 (1967).
8. W. Bollmann, *Surf. Sci.*, **31**, 1 (1972).
9. M. Weins, B. Chalmers, H. Gleiter, and M. Ashby, *Script. Metall.*, **3**, 60 (1969).
10. D.A. Smith, V. Vitek, and R.C. Pond, *Acta Metall.*, **25**, 475 (1977).
11. D. Wolf, *J. Physique*, **C4**-197 (1985).
12. J.P. Hirth, and R.W. Balluffi, *Acta Metall.*, **21**, 929 (1973).
13. A.H. King, and D.A. Smith, *Acta Cryst.*, **A36**, 335 (1980).
14. P.H. Pumphrey, and H. Gleiter, *Phil. Mag.*, **A30**, 593 (1974).
15. P.H. Pumphrey, H. Gleiter, and P. Goodhew, *Phil. Mag.* **A36**, 1099 (1977).
16. W. Bollmann, *Crystal Defects and Crystalline Interfaces*, Springer, Berlin (1970).
17. A.H. King, and D.A. Smith, *Acta Cryst.*, **A36**, 335 (1980).
18. J. Taftø, and J.C. Spence, *J. Appl. Cryst.*, **15**, 60 (1982).
19. B.C. DeCooman, Ph.D. thesis, Cornell University (1987).
20. N.-H. Cho, and C.B. Carter, *Korean J. Cryst.*, **6**(2), 69 (1995).