한국전자현미경학회지 제 26 권 제 4 호 1996
Korean J. Electron Microscopy 26(4), 479~487(1996)

GaAs/AlAs/InGaAs 에피층의 고분해능 TEM 이미지 전산모사

이확주 · 류 현 · 이재덕 · 남 산*
한국표준과학연구원 소재평가센터
*고려대학교 공과대학 재료금속공학부

Computer Simulations of HRTEM Images in GaAs/AlAs/InGaAs Epilayers

Lee, Hwack Joo, Hyun Ryu, J.D. Lee and Nahm Sahn*
Materials Evaluation Center, Korea Research Institute of Standards and Science,
Taejon Korea, 305-600
*Division of Materials and Metallurgical Engineering, Korea University,
Seoul, Korea, 136-170
(Received July 22, 1996)

ABSTRACT

Thin epilayer structures of GaAs/AlAs/InGaAs, grown by Molecular Beam Epitaxy, were investigated by high resolution transmission electron microscopy. Image in the [110] zone axis was taken and compared with the calculated images. The supercell structure which contains GaAs, AlAs and InGaAs layers was designed and was employed in the image calculation with MacTempas computer program. Good agreement was shown between experimental image and a set of calculated images with varying defocus and sample thickness.

Key word : 고분해능 TEM 이미지, 전산모사, MacTempas, 탈초점, Scherzer 초점이탈

서 론

고분해능 투과전자현미경(HRTEM)을 이용하여 얻은 격자상을 해석하는 데에는 관찰된 상과 특정한 모델을 근거로 컴퓨터에 의해 모사된 영상과 비교 분석하는 작업이 필요하다. 격자상을 직관적으로 해석할 수 있는 유일한 경우는 약위상체, Scherzer 초점이탈, 그리고 적절한 대물렌즈 조리개 선택 등의 조건이 만족될 경우이다. 그러나, 각 조건 및 연관된 작동변수를 인위적으로 조절하는 데에는 한계가 있게 된다.

약위상체의 가정이 유효하기 위해서는 결정시편의 두께는 매우 얇고 원자번호도 작아야 한다. 따라서, 실제 실험조건에서 약위상체의 조건이 성립되기는 매우 어렵다. 대물렌즈 조리개의 크기는, Scherzer 초점이탈과 분해능의 기준에 따르면, 콘트라스트 전달함수의 첫 번째 0 이후 모든 공간주파수가 제거되도록 대물렌즈의 조리개의 크기를 선정하여야 한다. 일반적으로, Scherzer 초점이탈을 알고 그 조건하에서 영상을 기록하는 경우는 매우 드물다. 일련의 대물렌즈 초점이탈 값에서 영상들

을 기록하고, 이들로부터 역으로 각각의 조건에서 초점 이탈값을 구할 수 있다. 빔 발산과 색수차 등이 심해지면, 콘트라스트 함수가 변화되어 실제 영상의 콘트라스트는 작아져서 영상의 해석은 더욱 어렵게 된다. 이러한 경우 고분해능 투과전자현미경 영상에는 물질의 구조와 직접 관련되지 않는 콘트라스트(artifacts)가 만들어질 수 있다.

고분해능 TEM을 이용하여 물질의 원자구조를 결정할 경우에는 동력학적 산란(dynamical scattering) 효과와 전달함수(transfer function) 효과가 고려된 컴퓨터 계산을 이용하여 여러 가지 초점이탈값 및 시료의 두께 변화에 따른 이미지를 전산모사하고 이를 실험 데이터와 비교하여야 한다. 최근 소형컴퓨터의 발달로 전산모사를 위한 프로그램도 많이 개발되었는데, 이들중에는 MacTempas, EMS (Electron Microscopy Software), CERIUS 등이 있다.

결함을 지니는 고분해능 투과전자현미경 이미지를 컴퓨터로 분석하는 방법으로 결함을 포함하는 "supercell"을 만드는 방법이 있다(Spence, 1981). 이 방법은 고에너지 전자의 전방산란 특성을 이용한 것으로 시료의 출구부에서 전자빔의 동력학적 이미지의 파동함수는 직경이 0.5 nm 이내이고 축이 빔방향인 작은 원통(cylinder)안에 있는 결정의 포텐샬만으로 결정된다. 따라서 구조결함과 같은 서너개원자 크기의 특별한 칼럼에서의 원자위치를 찾고자 할 때에는 다소 작은 크기의 인위적인 supercell을 만들어 사용할 수 있다. 이는 정대축 배열에서만 적용할 수 있고 그 범위는 두께가 20 nm 미만에서는 폭의 크기는 약 2.5 nm까지 가능하다. 폭의 크기를 더 크게 잡으면, 계산시간과 용량이 증가하는 어려움이 있다.

이 방법을 이용한 GaAs/AlAs 계면에 관한 전산모사의 연구인 실험치와 계산값의 비교는 deJong 등(1987)에 의하여 시도되었으나 supercell의 구성이라든지 계산방법에 대한 자세한 논의가 없었다. 특히 AlAs층이 서너개의 원자층으로 구성되고 이어 InGaAs가 적층되었을 때의 효과는 고려되지 않았다. 따라서, 본 연구에서는 GaAs 기판위에 AlAs를 1~2개의 단원자층(ML; monolayer)을 적층시켜 제작된 GaAs/AlAs 양자우물 구조를 MacTempas 프로그램을 이용하여 전산모사하여 실험치와 비교하고 그에 따른 응용 등을 소개하고자 한다.

실 험 방 법

1. GaAs/AlAs/$In_xGa_{1-x}As$(x=0.14)의 양자우물구조의 제작

실험에 사용된 양자우물 구조는 MBE 시스템을 이용하여 성장시켰으며 이때 사용된 기판은 직경이 약 5 cm (2″)인 반부도체(semi-insulating)인 (001) GaAs을 사용하였다. 기판은 출구 챔버에서 200°C에서 30분간 탈가스법으로 건식세척을 하여, 전송 챔버를 통하여 성장 챔버로 이동되었다. 성장챔버에서는 산화물 제거를 위하여 59°C에서 10분간 가열하였다. 그 다음 기판온도를 성장온도인 580°C로 낮추었다. 필름은 tetramer arsenic 소스 As_4를 사용하였고, 압력은 2×4 As가 안정화된 표면구조를 이루도록 충분한 압력을 가하였다. 필름은 초기에 성장속도 1 μm/h, As_4대 Ga의 BEP (beam equivalent pressure)가 20이 되도록 하여 0.5 μm 두께의 버퍼층을 형성한 다음 100 nm의 GaAs 층을 성장시켰다. 그 다음에는, 2 MLs (monolayers)의 AlAs 층을 성장시킨 후, 1.5, 7, 11.5, 그리고 20 nm 두께의 $In_xGa_{1-x}As$(x=0.14)층을 각각 성장시키고 사이사이의 GaAs barrier 층을 100 nm씩 530°C에서 성장시켜 3쌍의 조합을 만들고 최종 cap layer GaAs층은 약 50 nm 성장시켰다. 또한 같은 성장조건이지만 AlAs층이 성장안된 GaAs/InGaAs 필름도 성장시켰다. 투과전자현미경은 300 kV에서 작동되는 히타치사 H-9000 NAR을 사용하였으며 점분해능은 대략 0.18 nm이다.

2. 전산모사를 위한 supercell 구조

GaAs, AlAs 그리고 $In_xGa_{1-x}As$(x=0.14)를 포함하는 셀(cell)을 만들기 위하여 표 1과 같은 원자배치와 Debye-Waller 인자 그리고 점유확률(occupation probability)을 나타냈다.

그림 1에 [100] 방향으로 투영시킨 supercell의 구조를 나타냈다. z방향으로 5와 6층의 Ga원자위치에 Al이 대치되었다. 7과 8층에는 Ga와 In이 점유율이 각각 0.86과 0.14로 위치한다. 그리고 이들 III족 원자의 중간층에 As 원자를 위치시켰다. MacTempas를 구동시키기 위해 다음과 같은 데이터를 입력하였다.

Table 1. Parameters of atoms in the supercell.

원자종류	원자 위치			Debye-Waller인자	Occupation Probability
	x	y	z		
1) Ga	0.00	0.00	0.00	0.7680	1.0
2) Ga	0.50	0.00	0.125	0.7680	1.0
3) Ga	0.00	0.50	0.125	0.7680	1.0
4) Ga	0.50	0.50	0.00	0.7680	1.0
5) Ga	0.00	0.00	0.75	0.7680	0.86
6) Ga	0.50	0.00	0.875	0.7680	0.86
7) Ga	0.00	0.50	0.875	0.7680	0.86
8) Ga	0.50	0.50	0.75	0.7680	0.86
9) Ga	0.00	0.00	0.25	0.7680	1.00
10) Ga	0.50	0.00	0.375	0.7680	1.00
11) Ga	0.50	0.50	0.25	0.7680	1.0
12) Ga	0.00	0.50	0.375	0.7680	1.0
13) Al	0.00	0.00	0.50	0.690	1.0
14) Al	0.50	0.00	0.625	0.690	1.0
15) Al	0.00	0.50	0.625	0.690	1.0
16) Al	0.50	0.50	0.50	0.690	1.0
17) As	0.25	0.25	0.06250	0.7875	1.0
18) As	0.75	0.25	0.1875	0.7875	1.0
19) As	0.75	0.75	0.0625	0.7875	1.0
20) As	0.25	0.25	0.3125	0.7875	1.0
21) As	0.75	0.25	0.4375	0.7875	1.0
22) As	0.25	0.75	0.1875	0.7875	1.0
23) As	0.25	0.75	0.4375	0.7875	1.0
24) As	0.75	0.75	0.3125	0.7875	1.0
25) As	0.25	0.25	0.5625	0.7875	1.0
26) As	0.75	0.25	0.6875	0.7875	1.0
27) As	0.75	0.75	0.5625	0.7875	1.0
28) As	0.25	0.75	0.6875	0.7875	1.0
29) As	0.25	0.25	0.8125	0.7875	1.0
30) As	0.75	0.25	0.9375	0.7875	1.0
31) As	0.75	0.75	0.8125	0.7875	1.0
32) As	0.25	0.75	0.9375	0.7875	1.0
33) In	0.00	0.00	0.75	0.5074	0.14
34) In	0.50	0.00	0.875	0.5074	0.14
35) In	0.00	0.50	0.875	0.5074	0.14
36) In	0.50	0.50	0.75	0.5074	0.14

1) 공간 그룹(space group) : supercell의 모델이므로 공간그룹번호를 1 로 하였다.

2) 격자상수 : a=0.565 nm, b=0.565 nm, c=2.260 nm
supercell은 a와 b축은 GaAs의 a, b와 같게 잡고 c 축은 GaAs의 c축보다 2.5배 크게하여 GaAs, AlAs층과 InGaAs층을 이루게 하였다. 이들 축간에 이루는 각도는 90°로 하였다.

3) Gmax : Multislice 계산에서 최대 역격자공간벡타=20.00 nm^{-1}

4) 입사 빔의 방향은 [110]

5) 대칭(symmetry) 연산자의 수 : 1 그리고 단위포의 slice 수=3

6) 사용된 전자현미경 : H9000-NAR,
구면수차계수(C_s)=0.7 mm,
탈초점의 분산(spread of defocus)=4.62 nm,
semi-angle of divergence=0.5 mrad

7) 사용된 가속전압 : 300 kV

8) Laue 원의 중심 : (0.00, 0.00)

9) 두께 변화 : 10 nm에서 30 nm까지 일정 두께변화를 주었다.

10) 탈초점(Defocus) 값의 변화 : −30 nm에서 −35 nm까지 1 nm 간격으로 구하였다.

11) 조리개 반경 : 7.0 nm^{-1}

12) 조리개의 중심위치 : (0, 0)

13) 광축의 위치 : (0, 0)

결과 및 토의

그림 2는 성장시킨 에피층 단면의 TEM 명시야 영상이다. 화살표가 나타내는 층은 AlAs/InGaAs/AlAs층을 나타내며 AlAs층은 2 MLs으로 그리고 InGaAs층은 아래에서 위로 각각 1.5, 7, 11.5, 그리고 20 nm로 성장시켰다. AlAs/InGaAs/AlAs층은 GaAs층보다 좀 더 어두운 콘트라스트를 보여준다. 그림 3은 그림 2의 3번째층의 고분해능 TEM 사진이다. 정대축은 [110]이다. AlAs층은 GaAs와 InGaAs층에 비하여 더 밝은 콘트라스트로 대체로 2개의 MLs층을 이루고 있다. 전산모사된 이미지를 오른쪽 상단에 부착시켰다. 반면, GaAs와 InGaAs 층은 콘트라스트에 의한 구별이 되지 않는다. 그림 4는 AlAs층이 없이 성장시킨 GaAs/InGaAs/GaAs층의 정대축이 [110]인 고분해능 TEM 단면 사진이다. 사진에서 보듯이 경계면을 제외하고는 거의 콘트라스트 차이를 알 수 없다. 그림 3에서 알 수 있듯이 AlAs의 2층의 적층을 목표하였으나 GaAs 층의 표면상태에 의하여 3층내지 4층을 이루는 곳도 있고 적층된 층의 높이가 한층 내지 2층 차이가 남을 알 수 있는데, 이는 GaAs 표면에 존재하는 계단구조를 이루는 ledge 구

조에 기인하는 것이다.

사용된 투과전자현미경의 Scherzer 초점값은 약 −43 nm이므로 이 값 주변의 탈초점 값과 여러 가지 두께에 대해 전산모사된 이미지를 조사하였다. 현미경에서 실험적으로 조절할 수 있는 최소의 탈초점의 범위는 2 nm이다. 그림 5a)와 b)는 앞에서 구성한 supercell에 대하여 여러가지 두께와 탈초점에 대하여 전산모사된 이미지를 나타낸다. 탈초점이 −30에서 −35 nm으로, 시료의 두께는 2에서 28 nm까지 변화시켰다. 영상의 변화는 탈초점값에 의한 변화보다는 시료의 두께에 더 예민하게 변화하므로 시료의 두께에 대한 효과를 고려해 보자. 시료의 두께가 2와 4 nm의 시료에서는 세 층의 콘트라스트가 거의 같아서 층의 구별이 불가능하다. 시료두께가 6 nm이상이 되면, AlAs층의 콘트라스트가 밝게 되어 구별이 가능해지지만, GaAs층의 패턴이 다른 양상을 보인다. 시료두께가 20과 22 nm에서는 실험에서 얻은 이미지와는 많이 다른 양상을 보이며, 24 nm 이상에서 콘트라스트 차가 커지나 GaAs와 InGaAs 층의 이미지는 다르게 나타난다. 따라서 이 범위의 탈초점 값에서는 관찰된 영상과 매칭이 잘 이루워지지 않는다.

그림 6a)와 b)는 탈초점값이 −40에서 −45 nm이고 시료의 두께가 2에서 30 nm까지의 전산모사된 이미지를 나타낸다. 시료두께가 2에서 6 nm까지는 세층의 구별이 거의 불가능할 정도로 거의 같은 콘트라스트와 패턴을 보여준다. 두께가 8에서 15 nm에서는 명암의 밝기가 반전되어 AlAs층이 다른 층에 비하여 어둡게 나타나고 있다. 두께가 20 nm에서는 다시 AlAs층의 밝기가 밝아지나 다른 층의 패턴이 다르게 나타난다. 그러나, 시료두께가 22에서 30 nm사이에서의 영상은 실험에서 얻은 영상과 유사함을 알 수 있다. 이 현미경의 Scherzer 초점값은 약 −43 nm이므로, 그림 6b)에서 보듯, 넓은 두께 범위(22에서 30 nm)와 Scherzer 탈촛점값(−40에서 −45 nm) 부근에서는 AlAs층은 밝은 콘트라스트를 보여주며 실험에서 얻은 영상과 거의 일치하고 있다. 또한 In이 첨가된 층에서는, 일반적으로 In이 첨가될수록 어두운 콘트라스트를 보이나, Ga이 14% 치환한 시료에서는 GaAs와 거의 차이가 없음을 알 수 있었다. 탈초점이 더 벗어난 −50에서 −55 nm에서는 그림 5와 유사한 이미지를 나타낸다.

따라서, GaAs/InGaAs/GaAs층은 최적 초점조건, 즉 Scherzer 초점값 부근의 비교적 넓은 범위의 다소 두꺼운 두께에 걸쳐, 같은 이미지를 얻기가 용이함을 알 수 있다. 이러한 성질을 이용하여 실제 성장에서 AlAs가 성장한 GaAs의 표면구성과 성장된 AlAs층의 두께를 확인하여 정확한 성장조건의 제어가 가능해지며, 또한 원자크기에의 계면에서의 미세한 원자거동에 관한 연구를 심도있게 수행할 수 있게 된다. Ikarashi와 Ishida는 (1996) 이를 이용하여 AlAs가 적층되기 전의 GaAs의 표면구조, 즉 ledge의 구조 간격 등에 대한 분석을 시도하였다.

결 론

이상과 같은 실험 및 컴퓨터 모사에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 1내지 2 monolayer의 AlAs층을 함유하는 GaAs/AlAs/InGaAs층에 대한 supercell을 설계하고 이를 MacTempas 프로그램을 이용하여 전산모사하여 이를 MBE로 성장시킨 에피층의 HRTEM 이미지와 비교하였다.
2) AlAs 층은 밝은 콘트라스트를 보이며 비교적 넓은 범위의 시료두께와 탈초점 범위에서 실험에서 구한 이미지와 잘 일치하였다.
3) 위의 결과로 고분해능 TEM 이미지의 직접적인 해석이 가능하며, 원자레벨의 AlAs 에피층의 성장거동에 관한 해석이 가능하다.

감사의 글

본 연구는 과학기술처 출연연구비로 진행되었으며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

Cowley JM, 1981. Diffraction Physics, North-Holland Publ. Co., Amsterdam, chapter 13
deJong AF, Bender H, Coene W, 1987. "Actual Comparision of Experimental and simulated lattice images of the GaAs/AlAs interface", Ultramicroscopy, 21, 373-378

Ikarashi N, Ishida K, 1996. "High-resolution transmission electron microscopy of AlAs-GaAs semiconductor superlattice", J. Materials Science : Materials in electronics, 7, 285-295

Spence JCH, 1981. Experimental High Resolution Electron Microscopy, Oxford Univ. press, Oxford, chapter 5

FIGURE LEGENDS

Fig. 1. Schematic diagram of supercell structure projected in [100] direction.

Fig. 2. Cross-sectional TEM micrograph of GaAs/AlAs/InGaAs layers grown on (001)GaAs.

Fig. 3. High-resolution TEM image of GaAs/AlAs/InGaAs layer with [110] zone axis, showing the AlAs layer in brighter contrast.

Fig. 4. High-resolution TEM image of GaAs/InGaAs layer with [110] zone axis, illustrating the slightly darker area of InGaAs layer.

Fig. 5. Computer simulation images of GaAs/AlAs/InGaAs layers with [110] zone axis.
Defocus values are ranged from −30 nm to −35 nm and the thicknesses of sample are a) from 2 nm to 10 nm; b) from 20 nm to 28 nm.

Fig. 6. Computer simulation images of GaAs/AlAs/InGaAs layers with [110] zone axis.
Defocus values are ranged from −40 nm to −45 nm and the thicknesses of sample are a) from 2 nm to 10 nm; b) from 10 nm to 30 nm

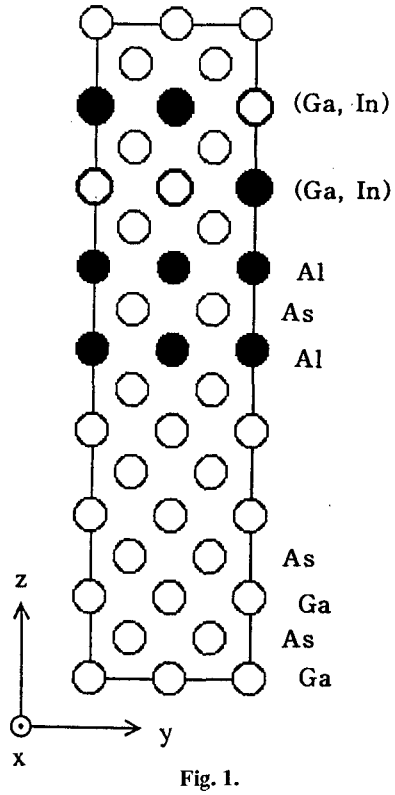

Fig. 1.

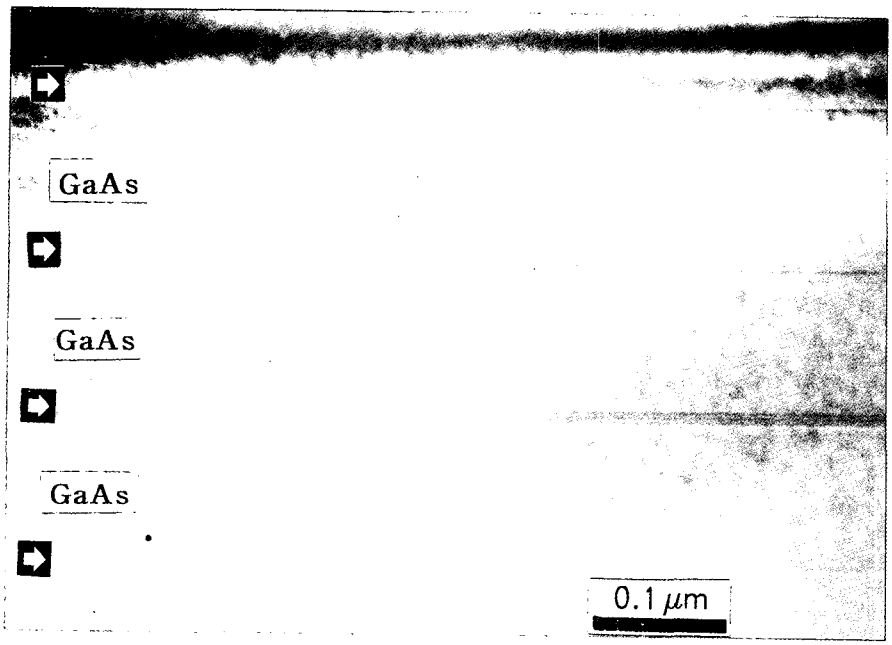

Fig. 2.

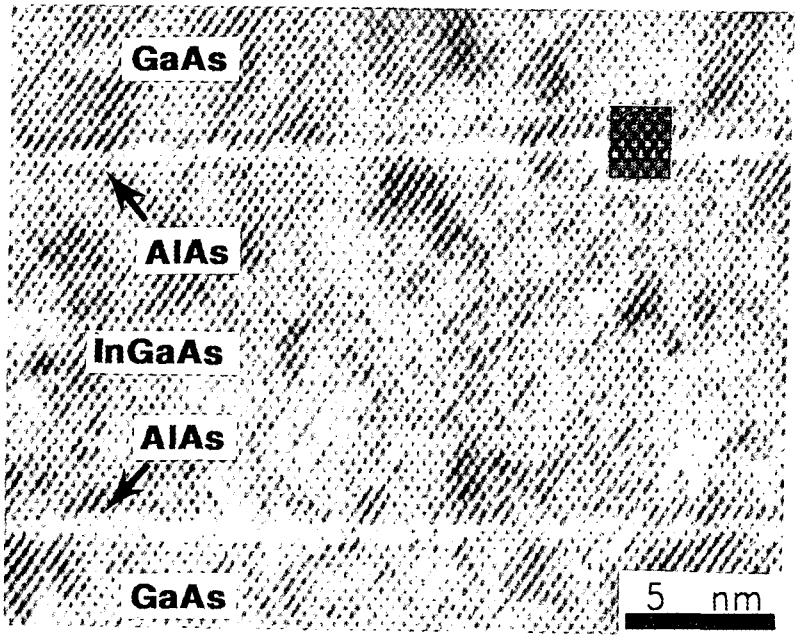

Fig. 3.

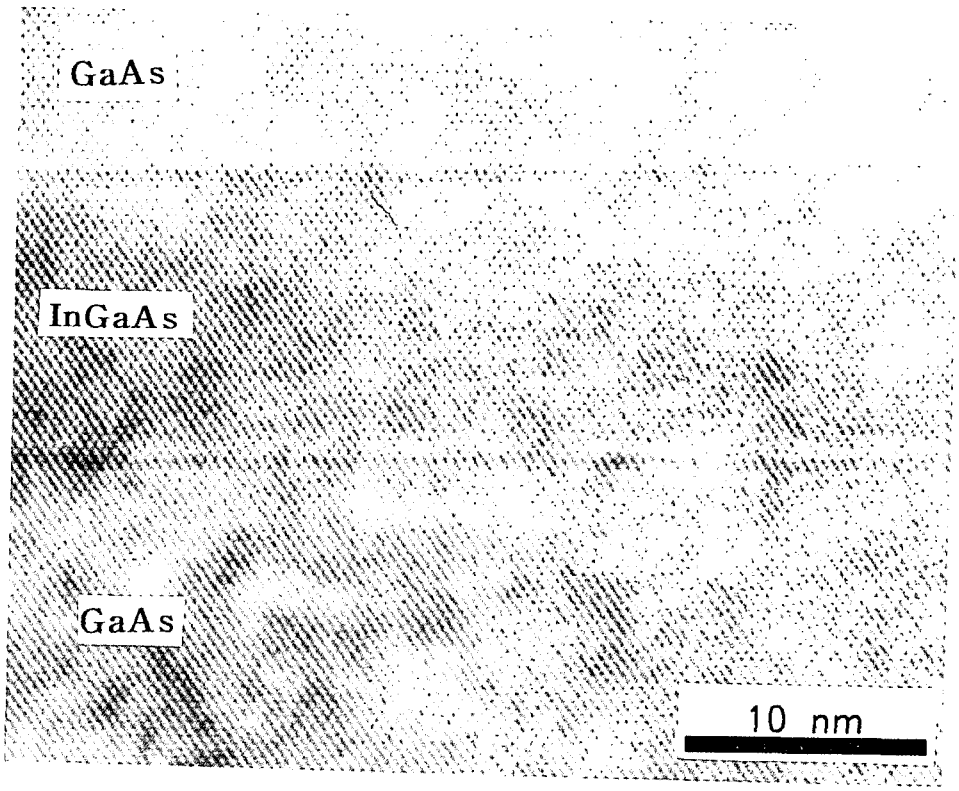

Fig. 4.

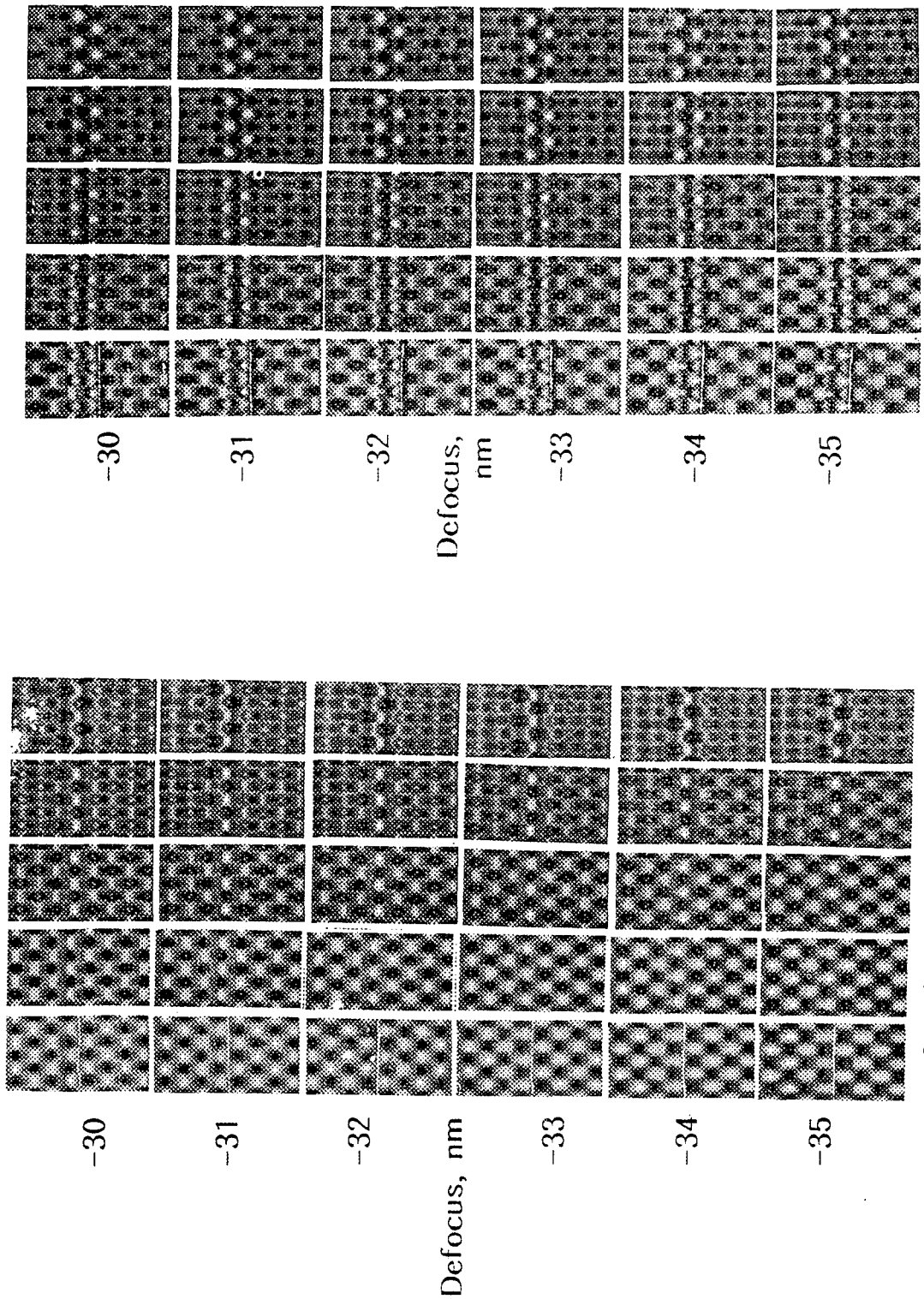
Defocus, nm
-30
-31
-32
-33
-34
-35
2 4 6 8 10
Thickness, nm
a)
Defocus, nm
-30
-31
-32
-33
-34
-35
20 22 24 26 28
Thickness, nm
b)

Fig. 5.

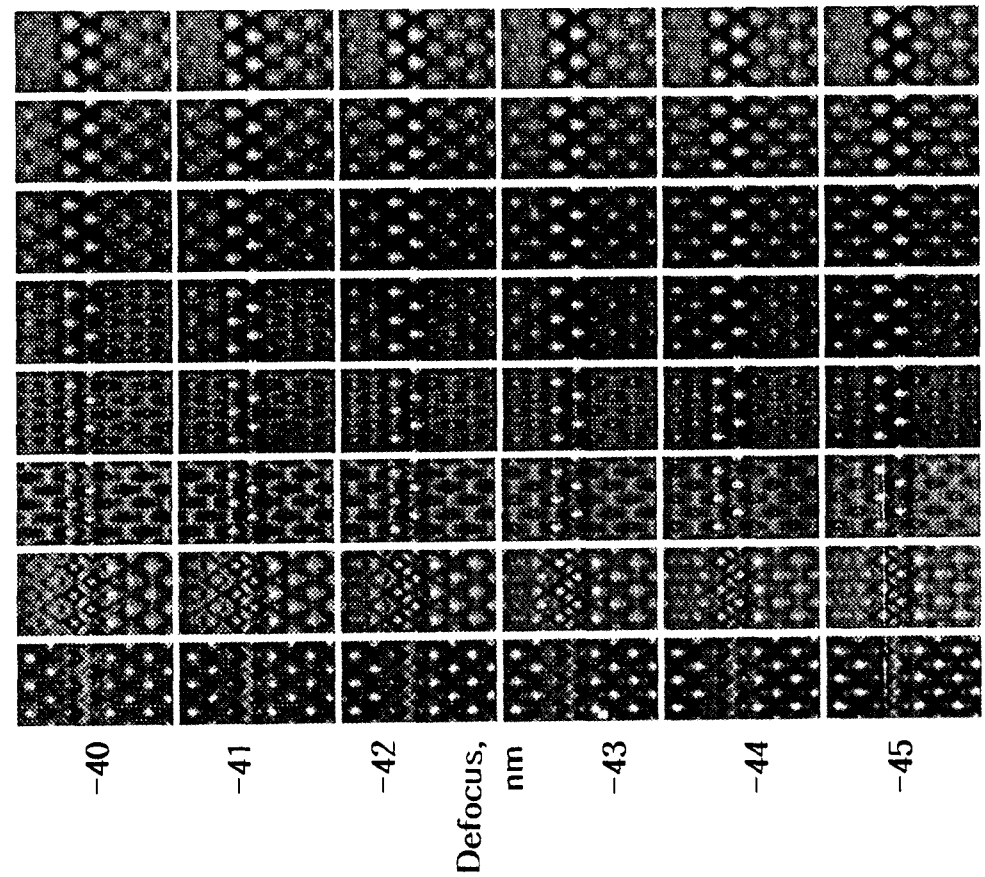
-40
-41
-42
Defocus, nm
-43
-44
-45
10 15 20 22 24 26 28 30
Thickness, nm
b)
-40
-41
-42
Defocus, nm
-43
-44
-45
2 4 6 8 10
Thickness, nm
a)

Fig. 6.