

반응성 직류 스퍼터법에 의한 질화 인듐 박막의 제막 특성

송풍근[†] · 류봉기* · 김광호*

아오야마가꾸인대학 이공학부화학과

*부산대학교 무기재료공학과

(2003년 6월 18일 접수; 2003년 7월 28일 승인)

Deposition Characteristic of InN_x Films by Reactive DC Magnetron Sputtering

Pung Keun Song,[†] Bong Ki Ryu,* and Kwang Ho Kim*

Department of Chemistry, College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University,
5-8-10 Fuchinobe, Sagamihara, Kanagawa 229-8558, Japan

*Department of Inorganic Materials Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea

(Received June 18, 2003; Accepted July 28, 2003)

초 록

질화 인듐(InN) 박막은 금속 타겟과 질소 가스를 사용한 반응성 직류 마그네트론 스퍼터링법에 의해 기판 가열없이 글래스 기판위에 제막 되어졌다. 제막은 Ar과 N₂의 혼합가스를 사용하여 다양한 전압(P_{tot})에서 행해졌다. 또한, 페닝 전리에 의한 기판상에 있어서의 박막의 질화 반응을 촉진시키기 위하여 He 가스가 도입되었다. N₂ 가스가 20% 이상 도입되었을 때, 플라즈마 임피던스는 크게 감소했으며, 이것은 금속 인듐과 비교해 상대적으로 2차 전자 방출 계수가 작은 InN_x 층이 타겟표면에 형성되었기 때문이라고 생각되어 진다. X-선 회절 분석 결과, InN 박막은 <001>의 강한 C축 우선 배향함을 보였으며, 제막시의 P_{tot}의 감소, 그리고 N₂ 가스 유량의 증가와 함께 박막의 결정성은 크게 증가함을 보였다. 이것은 P_{tot}의 감소에 따른 기판상에 도달하는 스퍼터 원자의 운동 에너지의 증가, 그리고 전자온도의 증가에 따른 질화 반응의 촉진에 기인한다고 생각된다. 또한, He 가스를 도입한 경우, 페닝전리에 의해 질화반응은 촉진되어 보다 적은 질소 가스의 도입에도 결정성이 양호한 박막을 얻을 수 있었다.

ABSTRACT

InN_x films were deposited on soda-lime glass without substrate heating by reactive dc magnetron sputtering using indium (In) metal target. Depositions were carried out under various total gas pressures (P_{tot}) of mixture gases (Ar+N₂ or He+N₂). He gas was introduced to N₂ gas in order to enhance the reactivity of nitrogen on film surface by the "penning ionization". Plasma impedance decreased greatly when 20% or more introduced the N₂ gas. This is due to the InN_x layers formed on target surface because a secondary electron emission rate of InN is small compared with In metal. XRD patterns of the films revealed that <001> preferred oriented polycrystalline InN_x films, where the crystallinity of the films was improved with decrease of P_{tot} and with increase of N₂ flow ratio. The improvement of the crystallinity and stoichiometry of the InN_x films were considered to be caused by an increase in the activated nitrogen radicals and also by an increase in the kinetic energy of sputtered In atoms arriving at growing film surface, which should enhance the chemical reaction and surface migration on the growing film surface, respectively. Furthermore, the films deposited using mixture gases of He+N₂ showed higher crystallinity compared with the film deposited by the mixture gases of Ar+N₂.

Key words : Indium nitride, Reactive dc magnetron sputtering, Crystallinity, Stoichiometry

1. 서 론

Aluminum Nitride (AlN), Gallium Nitride (GaN), 그리고 Indium Nitride (InN)와 같이 wurtzite 구조를 갖은 III-V족 질화물 반도체는 광전자 소자분야의 다양한 응용을 위하

여 연구되어 왔다.¹⁾ 이들 재료들 중, 1.9 eV의 밴드갭 에너지를 갖는 InN은 가시광 발광 다이오드와 고효율, 저비용의 태양전지와 같은 광전자 디바이스에 있어서 대단한 잠재적 응용성이 기대되기 때문에 중요한 재료임에 틀림이 없다.²⁾ 또한 InN은 Electrochromic (EC) 디바이스에 있어서 WO₃의 대극으로써 그 용이성이 기대되고 있다.³⁾ 그러나 InN은 500°C 이하의 낮은 해리온도를 가지기 때문에 다른 III-V족 질화물 반도체와 비교해서 제막상의 문제로 상대적으로 많은 관심을 받지 못했었기 때문에 연

[†]Corresponding author : Pung Keun Song

E-mail : song@chem.aoyama.ac.jp

Tel : +81-42-759-6222 Fax : +81-3-5384-6200

구 보고가 매우 적은 실정이다. 그러므로 막질이 양호한 InN 막을 형성하기 위해서는 가능한 낮은 기판 온도에서의 제막이 요구된다. 한편 금속 In은 반응성 스퍼터 프로세스에 있어서 InN 박막의 재료로서 사용할 수 있으며, 또한 스퍼터 프로세스는 기판과의 부착력이 뛰어나며 대면적에 균일하게 제막할 수 있는 장점을 가지고 있다.

따라서 본 실험에서는 기판 가열없이 다양한 조건에서 반응성 직류 스퍼터링법에 의한 InN 박막의 제막 특성을 조사했다.

2. 실험방법

250–400 nm의 두께를 가지는 InN 막은, 금속 In 타켓 (Furu-uchi Kagaku, purity; 99.999%)을 사용한 직류 마그네트론 스퍼터링법에 의해 제막되었다. 모든 제막에 대해, 기판 홀더 뒷면에 장착한 열전대를 사용하여 제막중의 기판 온도를 측정하고 결과 50°C 이하임을 알 수 있었다. 막질의 전압(P_{tot}) 의존성을 조사하기 위하여, 제막은 Ar과 N_2 혼합가스의 P_{tot} 이 서로 다른 0.5 Pa, 1.0 Pa, 그리고 3.0 Pa에서 행해졌다. 막질의 높은 재현성을 구현하기 위하여, 제막중의 챔버내에 남아있는 잔류 물분압은 사중극형 질량 분석기(Transpector XPR2, Inficon)를 사용하여 모니터링했으며, base pressure에 의해 제어했다. 금속 타켓을 사용한 반응성 스퍼터 프로세스는 반응성 가스의 도입량에 대해 제막 속도가 급격히 변하는 비선형 프로세스임이 널리 알려져 있다.⁴⁾ 따라서 본 연구에서는 모든 제막에 대하여 제막전에 금속 타켓의 표면을 청결히 하기 위하여 100% Ar 가스로 “Pre-pre-sputtering”을 20분간 행했다. 그 다음 타켓 표면의 화학적 안정성 및 방전의 안정성을 고려하여 제막시와 동일한 가스 조성비로 제막전에 “Pre-sputtering”을 20분간 행했다. 타켓과 기판과의 거리는 45 mm로 고정했으며, 직류방전 전력은 50 W로 일정하게 유지했다.

박막의 두께는 탐침법을 이용한 surface profiler(Dektak 3, Sloan Tech.)에 의해, 박막의 미세 구조는 40 kV-20 mA의 $CuK\alpha$ 선을 이용한 XRD법(XRD 6000, Shimadzu)에 의해 각각 측정했다. Scherrer법을 이용하여 X선 회절 피크의 FWHM으로부터 결정립 크기를 결정하기 위하여 XRD 정밀 측정은 0.01도의 스텝 간격으로 step-scan mode에 의해 실행되었다.⁵⁾ InN_x 박막중의 N와 O의 조성비는 X선 광전자 분광법(XPS, ESCA 750, Shimadzu)을 사용하여, In_{3d3/2} 및 In_{3d5/2}의 피크에 대한 N_{1s} 혹은 O_{1s} 피크의 적분 강도비로부터 산출했다. XPS의 분석전에 박막 표면을 1 kV-10 mA의 Ar 이온 조사에 의해 0, 2, 4.5분간 이온 에칭을 행했다. 플라즈마중의 활성종의 영향을 조사하기 위하여 발광분광법(Model 1470, SEIKO EG & G)에 의한 플라즈마 진단을 행했다.

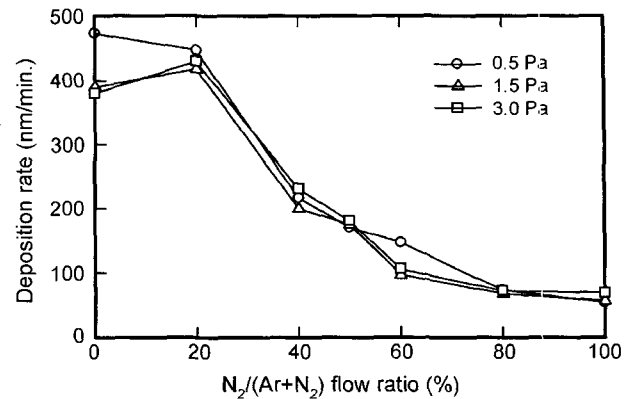


Fig. 1. Deposition rate of InN_x films in relation to flow ratio of N_2/Ar mixture gases for P_{tot} of 0.5 Pa, 1 Pa, and 3.0 Pa.

3. 결과 및 고찰

3.1. 제막속도 및 방전 특성

Fig. 1은 P_{tot} 0.5 Pa, 1.5 Pa, 그리고 3.0 Pa에 있어서 다양한 N_2 가스 도입량에 대한 InN_x 막의 제막속도의 변화를 나타낸다. 금속 In 타켓과 O_2 가스를 사용하여 반응성 스퍼터에 의해 In₂O₃을 제막할 경우, 반응성 가스인 O_2 의 도입량의 증가와 함께 제막속도가 급격히 감소하는 소위 “천이영역”(transition region)이라고 불리어 지는 영역이 존재하며, 이 영역을 초과한 경우, 제막속도는 O_2 도입량에 크게 의존하지 않으며 제막속도는 일정함을 나타낸다. 이것은 타켓 표면에 금속 In과 비교해서 스퍼터율이 작은 In₂O₃가 형성되기 때문으로 알려져 있다. 그러나, InN_x의 경우, 제막 속도가 급격히 감소하는 transition region은 존재하지 않고, 다만 20% 이상의 N_2 가스를 도입한 경우, 제막속도는 N_2 가스의 증가와 함께 단조롭게 감소함을 보였다. 이것은 In₂O₃의 해리 에너지(9.59 eV)와 비교해서 InN의 해리 에너지는 0.2 eV로 매우 작은 값을 가지기 때문이라고 생각되어 진다.⁶⁾ 또한, In₂O₃를 포함한 대부분의 산화물의 경우, P_{tot} 의 증가와 함께 O_2 의 분압도 증가하므로 타켓표면의 산화 반응은 촉진되어, P_{tot} 이 증가하면 transition region은 보다 낮은 O_2 도입량쪽으로 이동한다. 그러나, Fig. 1에서 알 수 있듯이, InN_x의 경우, 모든 P_{tot} 에 대하여 O_2 도입량과 transition region과의 뚜렷한 상관관계는 보이지 않았다. 이것은 P_{tot} 의 감소와 함께 In 타켓 표면의 화학 반응이 촉진되었기 때문이라고 생각되어 진다.

Fig. 2는 N_2 가스 도입량에 대한 타켓 전류(I) 및 전압(V)의 변화를 나타낸다. N_2 도입량 20% 이상에 대해서, N_2 도입량의 증가와 함께 타켓 전류는 뚜렷한 감소를 보였다. 한편, 타켓 전압은 방전 전력을 50 W로 일정하게 유지했기 때문에 N_2 가스의 증가와 함께 증가를 보였다. InN의 제막에 있어서, N_2 가스의 증가에 따른 이러한 플

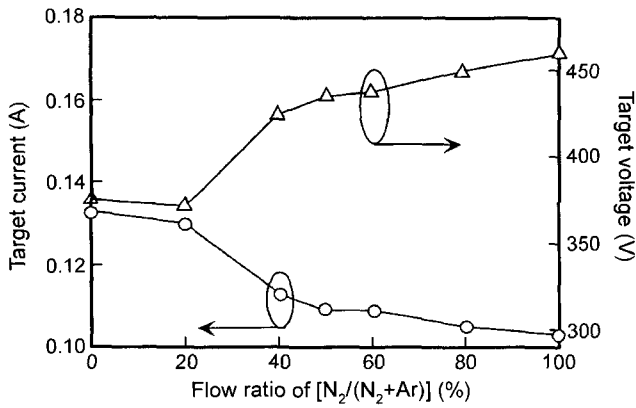


Fig. 2. The variation in target current (A) and target voltage (V) in relation to flow ratio of N₂/Ar gas.

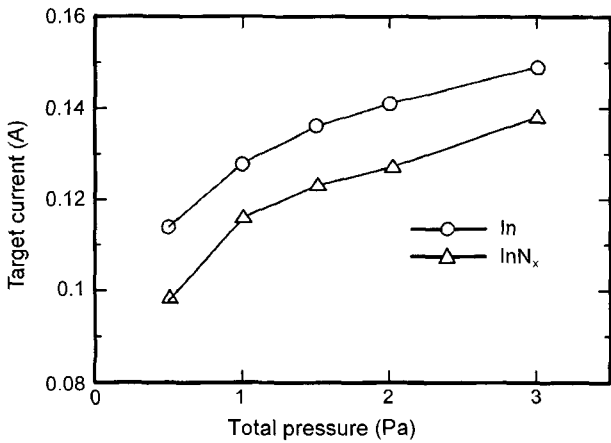


Fig. 3. The variation in target current in relation to total gas pressure for in metal and InN_x.

라즈마 임피던스의 증가를 조사하기 위하여, 금속 In과 InN_x 타겟에 대하여 Ar 100%의 가스로 스퍼터 했을 때의 타겟 전류의 P_{tot} 의존성을 Fig. 3에 나타낸다. In과 InN_x 타겟 모두 P_{tot}의 증가와 함께 타겟 전류는 증가함을 보인다. 이것은 P_{tot}의 증가에 따라 단순히 Ar 가스 분자가 증가했기 때문으로 생각된다. 그러나, 여기서 주목해야 할 점은 전체의 P_{tot}에 대하여 In 타겟이 InN_x 타겟보다 높은 전류값을 나타낸다는 것이다. 이 결과는 Fig. 2에서 N₂ 도입량의 증가에 따른 플라즈마 임피던스의 감소가 단순히 N₂ 가스의 증가 때문이 아니라 타겟 표면에 형성된 InN_x 층에 기인하며, 이것은 결국 InN_x 층이 금속 In 보다 2차 전자 방출 계수가 작음을 의미한다.

이러한 결과는 반응성 스퍼터에 의한 WN의 제막 프로세스에서도 관찰되어지며, 특히, 반응성 스퍼터에 의해 산화물 박막을 제작 할 경우와는 상반되는 결과로서 아주 흥미있는 현상이라고 생각되어진다. 또한 반응성 가스인 N₂의 유량에 따른 타겟의 I-V 특성의 변화는 Fig. 1에 나타낸 제막 속도의 변화와 잘 일치함을 보이고 있다. 즉,

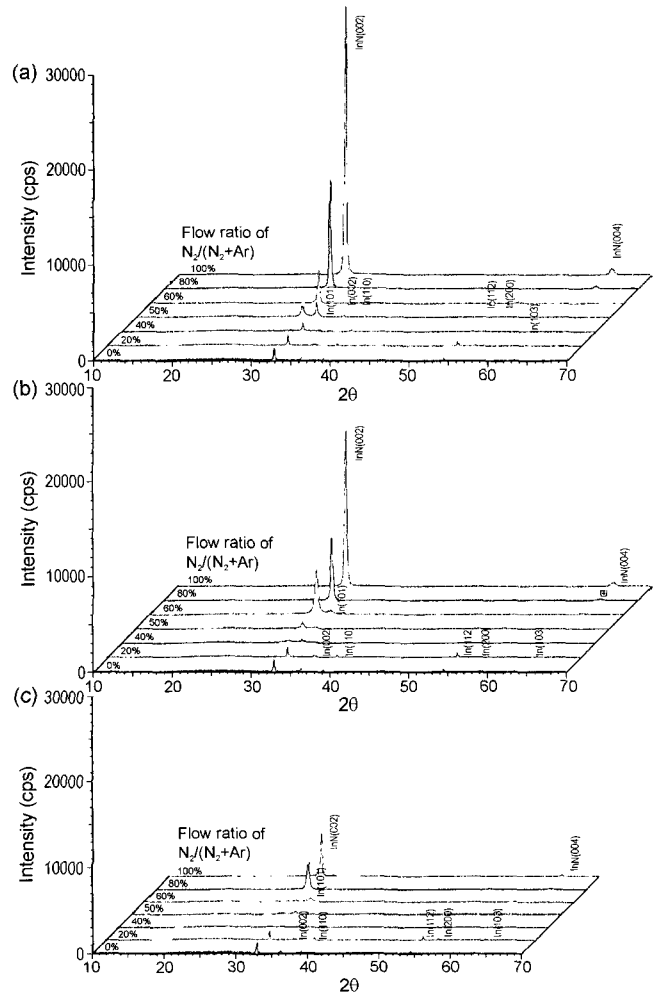


Fig. 4. XRD patterns of InN_x films deposited under various flow ratios of N₂/(N₂+Ar) at total gas pressure of (a) 0.5 Pa, (b) 1.5 Pa, and (c) 3.0 Pa.

N₂의 증가에 따른 제막 속도의 감소 및 플라즈마 임피던스의 증가는 타겟 표면에 형성된 InN_x에 기인함을 시사하고 있다.

3.2. InN_x 막의 미세구조

Fig. 4는 P_{tot} (a) 0.5 Pa, (b) 1.5 Pa, (c) 3.0 Pa에서 다양한 N₂ 도입량에 대해 기판 가열없이 제작한 InN_x 막의 XRD 패턴을 나타낸다. 각각의 P_{tot}에 대하여 N₂ 가스를 50% 이상 도입하여 제작한 InN_x 막은 <001>의 강한 우선 배향을 보이는 wurtzite형의 다결정 구조임을 알 수 있었다. 또한 각각의 P_{tot}에 대하여 (002) 피크 강도의 최대치는 Ar과 N₂의 혼합 가스가 아닌 N₂ 가스 100%를 사용하여 제작한 막에 대하여 얻을 수 있었으며, P_{tot}의 증가와 함께 (002) 피크 강도는 크게 감소함을 알 수 있었다. 또한 N₂ 가스 100%와 80%에서 제작한 이들 막들에 대해 Scherrer법에 의해 결정립 크기를 산정한 결과를 Table

Table 1. Crystallite Size of InN₂ Films Deposited under Various P_{tot} and N₂ Flow Ratio [N₂/(Ar+N₂)]

| P _{tot} (Pa) | N ₂ gas flow ratio (%) | Crystallite size (nm) |
|-----------------------|-----------------------------------|-----------------------|
| 0.5 | 80 | 47 |
| 0.5 | 100 | 45 |
| 1.5 | 80 | 36 |
| 1.5 | 100 | 39 |
| 3.0 | 80 | 20 |
| 3.0 | 100 | 31 |

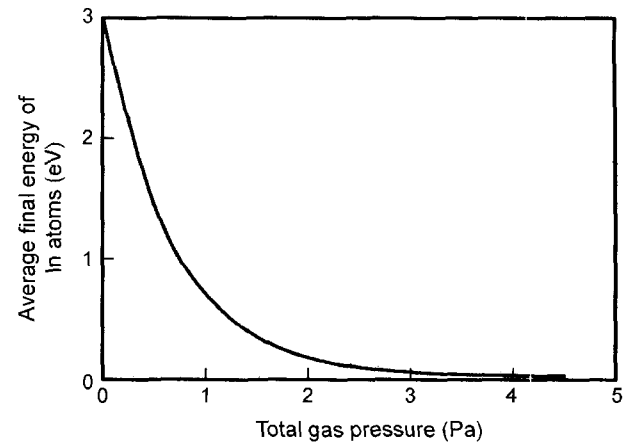
Table 2. Composition Estimated from XPS for the InN_x Films Deposited under Various P_{tot}

| P _{tot} (Pa) | Top surface (%) | | | Etched for 2 min (%) | | | Etched for 4.5 min (%) | | |
|-----------------------|-----------------|----|----|----------------------|----|----|------------------------|----|----|
| | In | N | O | In | N | O | In | N | O |
| 0.5 | 41 | 27 | 32 | 64 | 21 | 15 | 68 | 22 | 10 |
| 1.5 | 41 | 24 | 35 | 66 | 17 | 17 | 67 | 20 | 13 |
| 3.0 | 34 | 17 | 48 | 65 | 16 | 19 | 68 | 16 | 16 |

1에 나타낸다. N₂ 가스 100%에 대하여, 0.5 Pa의 경우 45 nm, 1.5 Pa의 경우 39 nm, 그리고 3.0 Pa의 경우 31 nm로 제작중의 P_{tot}의 감소와 함께 결정립 크기는 뚜렷하게 증가함을 알 수 있었다.

Table 2는 P_{tot} 0.5 Pa, 1.5 Pa, 그리고 3.0 Pa에서 N₂ 가스 100%를 사용하여 제작한 InN_x 막에 대한 XPS의 측정 결과를 나타낸다. 모든 막에 대하여 산소의 농도는 박막의 표면에서 가장 많이 관찰되었으며, Ar 이온의 에칭에 의해 크게 감소함을 보였다. 또한 P_{tot}의 증가와 함께 박막 내부의 산소가 크게 증가함을 알 수 있었다. 박막 내부에 존재하는 이들 산소는 주로 챔버 내부에 존재하는 잔류 물 분자에 기인한다고 생각되어 진다. 한편 Kumar⁷⁾는 InN_x 막 중의 산소의 존재는 물 분자의 흡착 자리로 작용하는 공공에 기인한다고 보고하고 있다. 그러므로, Thornton⁸⁾의 zone 모델에 의하면, 3.0 Pa에서 제작한 막은 0.5 Pa에서 제작한 막과 비교하여 응집 밀도가 낮을 것으로 판단되며, 박막중에 보다 많은 공공이 존재하기 때문에 그 결과 물분자의 흡착 자리가 증가했다고 생각되어 진다.

InN_x 박막의 결정성에 영향을 미치는 인자로서, 어느 정도의 운동 에너지를 가지고 성장중의 박막 표면에 입사하는 스퍼터 원자에 착목하여 생각해 본다. 타겟과 기관간의 거리인 45 mm를 비행하여 기관에 도달하는 스퍼터 원자들의 평균 에너지를 Monte Carlo simulation에 의해 계산했다. 타겟으로부터 방출되는 스퍼터 In 원자의 초기 에너지는 스퍼터 가스의 종류에 크게 의존하지 않기 때문에, 각각의 가스에 대하여 모두 3 eV로 가정했다. 스퍼터 원자의 속도(u)와 산란각(θ)은 강체구의 충돌 모델을 사용하여 다음과 같이 계산할 수 있다.^{9,10)}

**Fig. 5.** Average final energy of sputtered In atoms calculated as a function of total gas pressure using Monte Carlo method, when initial energy was 3 eV.

$$u = u_0 \frac{\sqrt{(M_{Zn} - M_G)^2 \cdot \cos^2 \theta_0 + (M_{Zn} + M_G)^2 \cdot \sin^2 \theta_0}}{M_{Zn} + M_G} \quad (1)$$

$$\tan(\theta_0 + \theta) = \frac{M_{Zn} + M_G}{M_{Zn} - M_G} \tan \theta_0, \quad (2)$$

여기서, u_0 는 충돌전의 스퍼터 원자의 속도이고, θ_0 는 충돌하는 두 입자의 중심을 연결한 선과 충돌전의 스퍼터 원자의 운동량 방향 사이의 각을 의미한다. M_{In} 와 M_G 는 각각 스퍼터 In 원자와 스퍼터 가스 분자의 질량을 나타낸다. 자유행정(free path)은 계산된 평균자유행정(mean free path)을 기초로 한 난수(random number) ϵ_1 를 사용하여 결정했으며, θ_0 는 ϵ_1 에 의존하지 않은 새로운 난수 ϵ_2 에 의해 결정 되어졌다.⁹⁾ 계산은 10⁹개의 입자에 대하여 행해졌다. N₂ 가스에 대하여 P_{tot}의 관수로서 계산한 스퍼터 In 원자의 평균 에너지를 Fig. 5에 나타낸다. P_{tot}의 증가와 함께 스퍼터 In 원자의 평균 에너지는 감소함을 알 수 있다. 이러한 에너지의 감소율은 충돌 횟수의 증가에 기인하며, 또한 충돌 횟수는 충돌 단면적(collision cross section)의 크기에 의해 지배됨을 알 수 있다. 열 평형화(thermalized)한 스퍼터 원자의 평균 에너지는 Maxwell-boltzmann 분포에 따르며, 다음과 같이 평균속도(u)에 의해 계산되어 진다.

$$u = \sqrt{8kT/\pi m} \quad (3)$$

실온의 300 K에 있어서 계산된 열 평형화한 스퍼터 원자의 평균 에너지는 0.0329 eV이다. 따라서, 전압의 증가에 따른 박막의 결정성의 저하는 박막 표면에 도달하는 스퍼터 원자의 운동 에너지의 감소에 기인한다고 생각된다.^{11,12)} 즉, 에너지가 감소함에 따라 스퍼터 원자는 안정한 결정 구조를 이루기 위하여 요구되어지는 정해진 원자 자리까지의 자기 확산이 불가능하게 되므로 결정성은 저하한다고 생각되어 진다.

또한 InN_x 박막의 화학 양론적 조성과 결정성은 플라즈마중에 존재하는 반응성이 높은 질소 활성종에 의존한다고 생각되어 진다. 일반적으로, 반응성 스퍼터에 의해 제작한 박막의 조성은 기판에 도달하는 금속 원자의 입사량과 반응성 가스원자의 반응도에 의해 결정되어 진다. 플라즈마중의 가스원자의 활성종은 주로 전자와의 충돌에 의해 생성되므로, 활성종의 생성은 플라즈마중의 전자온도에 크게 의존한다.¹³⁾ 따라서 플라즈마중의 활성종의 영향을 조사하기 위하여 발광분광법에 의한 플라즈마 진단을 행했다. 발광에 기여하는 여기상태의 Ar^* 은 기저상태로부터 여기상태 i 로 전자충돌여기 과정에 의해 생성된다. 여기상태 i 로부터 j 로의 천이에 일치하는 Ar^* 의 발광강도는 다음과 같이 주어진다.

$$I_{\text{Ar}^*} = N_{\text{Ar}} P_i T_{ij} g(\lambda) \quad (4)$$

N_{Ar} 는 Ar 원자의 밀도, T_{ij} 는 i 상태에 있는 전자가 발광하면서 j 상태로 완화하는 확률, $g(\lambda)$ 는 이 천이에 대해 방출된 광자의 경정된 비율, P_i 는 기저상태로부터 i 상태로의 여기 확률이며 다음과 같이 주어진다. 여기서, T_{ij} 와 $g(\lambda)$ 는 각각의 발광선에 대한 정수이다.

$$P_i = (2m_e)^{-1/2} [E_e^{-1/2} \sigma(E_e) N_e(E_e) dE_e] \quad (5)$$

$\sigma(E_e)$ 는 여기단면적이며, N_e , m_e , E_e 는 각각 전자의 밀도, 전자의 질량, 전자의 운동에너지이다.¹³⁾

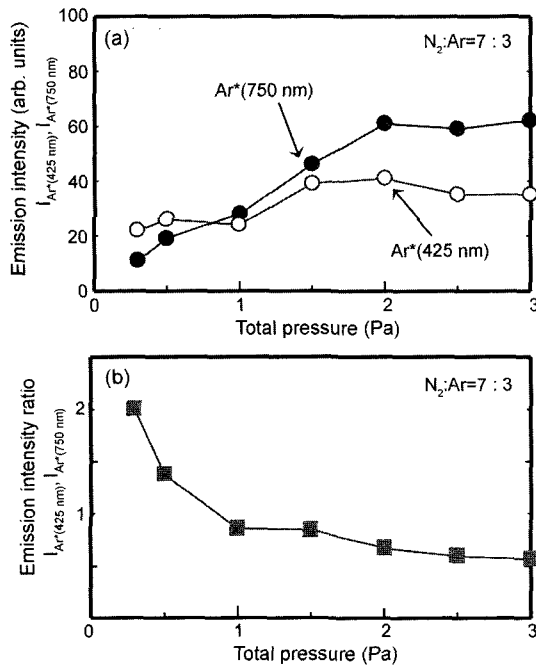


Fig. 6. Emmission intensity of $\text{Ar}^*(425 \text{ nm}, 750 \text{ nm})$ and intensity ratio of $\text{Ar}^*(425 \text{ nm}/750 \text{ nm})$ in relation to total gas pressure in a discharge of mixture gases ($\text{Ar}+\text{N}_2$).

Fig. 6은 N_2 과 Ar의 조성비가 7:3인 혼합가스를 사용한 경우, 전압의 변화에 대한 $\text{Ar}^*(425 \text{ nm}, 750 \text{ nm})$ 의 (a) 발광강도(I_{425}, I_{750}), 그리고 이들 두 발광선의 (b) 발광 강도비(I_{425}/I_{750})를 각각 나타낸다. $\text{Ar}^*(425 \text{ nm})$ 과 $\text{Ar}^*(750 \text{ nm})$ 의 천이는 $5p_{1/2}(14.46 \text{ eV}) \rightarrow 4s_{(3/2)}0(11.55 \text{ eV})$ 와 $4p'_{1/2}(13.48 \text{ eV}) \rightarrow 4s'_{(1/2)}0(11.83 \text{ eV})$ 에 일치한다. I_{425} 와 I_{750} 는 P_{tot} 의 증가와 함께 식(4)와 (5)에서 알 수 있듯이 N_{Ar} 와 N_e 의 증가에 의해 단조롭게 증가함을 알 수 있다. 반면, 이들의 발광 강도비인(I_{425}/I_{750})는 P_{tot} 의 증가에 따라 점점 감소함을 알 수 있다. 이것은 $I_{425}(14.46 \text{ eV})$ 의 여기상태가 $I_{750}(13.38 \text{ eV})$ 보다 더 높은 여기상태이기 때문에 전자온도의 감소를 의미한다.

한편, 금속 In는 원자상의 질소와 반응성은 높으나 분자상의 질소와는 낮은 반응성을 가지고 있기 때문에, 성

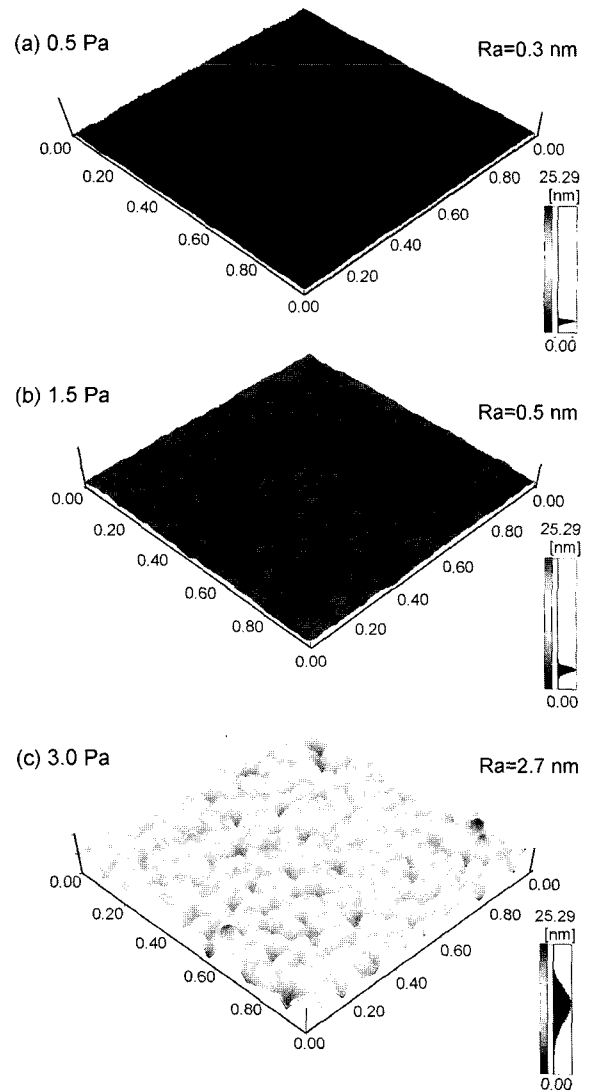


Fig. 7. AFM images of InN films deposited using 100% N_2 at total gas pressure of (a) 0.5 Pa, (b) 1.5 Pa, and (c) 3.0 Pa.

장층의 박막에 있어서 질소의 존재는 박막 표면에 있어서 반응성이 높은 원자상의 질소 활성화종에 의존한다고 보고되어졌다.¹⁴⁾ 따라서 제막중의 P_{tot} 이 낮은 경우, 보다 양호한 결정성과 화학 양론 조성의 박막이 얻어지는 것은 P_{tot} 의 감소함께 전자온도의 증가에 따른 반응성이 높은 원자상의 질소 활성화종의 증가에 기인한다고 생각되어 진다.

3.3. 박막의 표면 형상 및 He 첨가효과

Fig. 7은 N_2 100% 가스를 사용하여 (a) 0.5 Pa, (b) 1.5 Pa, (c) 3.0 Pa에서 제작한 InN_x 박막에 대하여 원자력간 현미경을 사용하여 표면 형상 및 평활도를 관찰한 결과를 나타낸다. Table 1의 결과에 따르면, P_{tot} 의 증가와 함께 박막의 결정립 크기는 감소함에도 불구하고, 박막표면의 평균 거칠기(Ra)는 P_{tot} 가 0.5 Pa에서 3.0 Pa로 증가했을 때 0.3 nm에서 2.6 nm로 증가했다. 따라서 이것은 전형적인 C축 배향의 주상구조로 성장하는 InN 막의 결정립 크기와는 상관없이, P_{tot} 의 증가에 따른 기판에 입사하는 스퍼터 In 원자의 "Shadowing" 효과의 증가에 기인한다고 생각되어 진다.

Fig. 8은 N_2 와 He 을 50:50으로 혼합한 가스를 사용하여 (a) 0.5 Pa, (b) 1.5 Pa, (c) 3.0 Pa에서 제작한 InN_x 의 XRD 패턴을 나타낸다. Fig. 4(a), (b), (c)에서 N_2 와 Ar 을 50:50으로 혼합한 가스를 사용하여 제작한 막과 (002) 피크의 강도와 반가폭을 비교해 보면, He 첨가의 경우 결정성이 매우 향상됨을 알 수 있다. 이것은 N_2 와 Ar 의 혼합가스의 경우, 반응성이 높은 질소 활성화종의 생성과정이 대부분 전자와의 충돌여기에만 의존하는 반면, N_2 와 He 혼합가스의 경우는 여기상태의 He 원자가 N_2 를 전리 및 여기시킬 수 있는 충분한 에너지를 가지고 있기 때문에,

즉, 소위 페닝전리에 의해 반응성이 높은 질소 원자가 보다 많이 생성되었기 때문이라고 생각되어 진다. 일반적으로 페닝전리는 높은 방전압력에서 현저히 나타난다고 보고되어 있지만, 여기서는 우선 여기상태의 He 원자를 보다 많이 생성하기 위해서는 보다 높은 전자온도가 요구되어 지기 때문에, P_{tot} 이 낮은 경우에 오히려 페닝 여기 효과가 더욱 두드러지게 나타났다고 생각되어 진다.

4. 결 론

금속 In 타겟을 사용한 반응성 마그네트론 스퍼터에 의해 제작한 InN_x 박막의 결정성 및 화학적 조성은 제막중의 P_{tot} 의 감소와 함께 개선됨을 보였다. InN_x 박막의 결정성 및 화학적 조성에 대한 제막중의 영향은 다음과 같은 두 가지의 가능한 메커니즘에 의해 설명되어 질 수 있다. (1) 박막의 결정성은 박막표면에 도달하는 스퍼터 In 원자의 운동에너지에 크게 영향을 받는다. 즉, P_{tot} 이 낮은 경우, 스퍼터 In 원자는 보다 큰 에너지를 가지고 성장중의 박막 표면에 도달하므로 표면 확산이 촉진되어 결정성이 증가한다. (2) 발광 분광에 의한 플라즈마 진단의 결과로부터 제막중의 P_{tot} 의 증가와 함께 전자온도는 감소함을 알 수 있었다. 따라서, P_{tot} 의 감소와 함께 전자와의 충돌여기 과정에 의해 생성된 원자상의 질소 활성화종은 전자온도의 증가와 함께 증가할 것이며, 이 결과 박막의 성장은 촉진될 것이다. 또한, He 와 N_2 의 혼합가스를 사용하는 Ar 과 N_2 의 혼합가스에 비해, 결정성의 양호한 InN 막을 얻을 수 있었다. 이것은 페닝전리에 의해 반응성이 높은 질소 활성화종이 보다 많이 생성되었기 때문이라고 생각되어 진다.

감사의 글

본 결과물은 과학기술부·한국과학재단에서 지정한 지역협력연구센터(RRC) 및 산업자원부·한국산업기술평가원에서 지정한 지역기술혁신센터(TIC)인 동의대학교 전자세라믹스센터의 지원을 받았습니다.

REFERENCES

1. N. E. Christensen and I. Gorczyca, "Optical and Structural Properties of III-V Nitrides under Pressure," *Phys. Rev.*, **50** 4397-413 (1994).
2. S. Strite and H. Morkoc, "Gallium Nitride, Aluminum Nitride and Indium Nitride : A Review," *J. Vac. Sci. Tech.*, **10** 1237-66 (1992).
3. N. Asai, Y. Inoue, H. Sugimura, and O. Takai, "Structural and Electrochromic Properties of InN Thin Films," *Thin Solid Films*, **332** 267-71 (1998).
4. W. D. Westwood, S. M. Rossnagel, and J. J. Cuomo Editore,

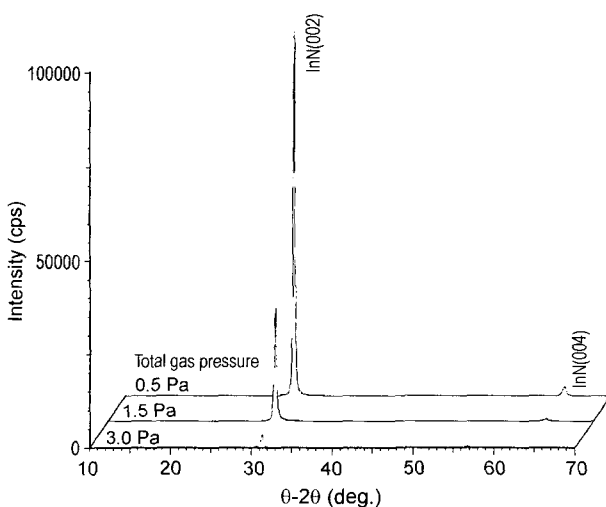


Fig. 8. XRD patterns of InN films deposited using mixture gases of He and N_2 at total gas pressure of 0.5 Pa, 1.5 Pa, and 3.0 Pa.

- "Handbook of Plasma Processing Technology," New Jersey : Noyes Publications, Chapter 9 (1990).
5. H. P. Klug and L. E. Alexander, "X-ray Diffraction Procedures for Polycrystalline and Amorphous Material," 2nd Ed. by Chap.9, Wiley, New York, 1974.
 6. A. H. Eltoukhy, B. R. Natarajan, and J. E. Green, "Mechanisms of Reactive Sputtering of Indium, II : Growth of Indium Oxynitride in Mixed Ar-N₂ Discharges," *Thin Solid Films*, **69** 217-27 (1980).
 7. S. Kumar, L. Mo, and T. L. Tansley, "Elemental Composition of Reactively Sputtered Indium Nitride Thin Films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** 2261-65 (1996).
 8. J. A. Thornton, "The Microstructure of Sputter-deposited Coatings," *J. Vac. Sci. Tech.*, **4** 3059-65 (1989).
 9. T. Motohiro and Y. Taga, "Monte Carlo Simulation of the Particle Transport Process in Sputter Deposition," *Thin Solid Films*, **112** 161-73 (1984).
 10. M. Kon, P. K. Song, A. Mitsui, and Y. Shigesato, "Crystallinity of Gallium-doped Zinc Oxide Films Deposited by DC Magnetron Sputtering Using Ar, Ne or Kr Gas," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** 6174-79 (2002).
 11. P. K. Song, Y. Shigesato, I. Yasui, C. W. Ow-Yang, and D. C. Paine, "Study on Crystallinity of Tin-doped Indium Oxide Films Deposited by DC Magnetron Sputtering," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37** 1870-76 (1998).
 12. P. K. Song and Y. Shigesato, "Structural Control of TCO Films," *J. Surf. Fin. Soc. of Jpn.*, **50** [9] 8-13 (1999).
 13. P. K. Song, D. Sato, M. Kon, and Y. Shigesato, "Crystallinity and Stoichiometry of InN_x Films Deposited by Reactive DC Magnetron Sputtering," *Vacuum*, **66** 373-78 (2002).
 14. B. R. Natarajan, A. H. Eltoukh, and J. E. Green, "Mechanisms of Reactive Sputtering of Indium, I : Growth of InN in Mixed Ar-N₂ Discharges," *Thin Solid Films*, **69** 201-16 (1980).