

Cross-sectional TEM Specimen Preparation of GaN-based Thinfilm Materials Using Alumina Dummy Filler

Sang Ho Oh, Joo-Hyoung Choi¹, Kyung Song¹,
Jong-Man Jeung¹, Jin-Gyu Kim¹, In Keun Yu²,
Suk Jae Yoo² and Young-Min Kim^{1,*}

Department of Materials Science and Engineering,
Pohang University of Science and Technology,
Pohang 790-784, Korea

¹Korea Basic Science Institute (KBSI)

²National Fusion Research Institute (NFRI),
Daejeon 305-333, Korea

(Received August 14, 2009; Accepted September 14, 2009)

ABSTRACT : Practical difficulties for preparing a good cross-sectional specimen of GaN-based materials for transmission electron microscopy have arisen due to large difference of mechanical properties between hard ceramic substrate and soft GaN-layered materials. Uneven polishing, sudden cracking, delamination, and selective sputtering during the conventional wedge polishing technique are often encountered as experimental hindrances. The preparation technique based on Strecker's method can be applied to overcome these difficulties, which eventually leads to mechanically stable TEM samples independent of the mechanical properties of materials. The basic idea is to use hard ceramic dummy filler for embedding the sample of interest into the dummy frame. In this study, we applied this technique into preparing cross-sectional TEM specimen of the GaN-based materials with mechanical instability and demonstrated usefulness of this hard dummy filler method in which the possible modifications of the sample of interest during the preparation must be avoidable. In addition, practical precautions during the preparation were discussed. (오상호, 최주형, 송경, 정종만, 김진규, 유인근, 유석재, 김영민: Alumina dummy 충전재를 이용한 GaN 기반 박막재료의 단면 TEM 시편준비)

Keywords : Cross-section specimen, GaN, Thinfilm, Hardness, TEM

투과전자현미경 관찰을 위한 박막 시료 제작에 있어서 ion-milling 기법에 의한 시료 제작은 가장 보편적으로 활용하는 기술이다(Weaver, 1997; Barna, 1999; Eberg, 2008; Okuno,

2008). 분석 목적에 따라 적층 박막 시료는 서로 다른 물리/화학적 가공과정들이 추가되나 기본적으로 절단-연마-미세연마(dimpling)-ion milling의 일반적인 공정을 거쳐 시료가 완성된다. Si 기반 적층 시료의 제작 기술은 이미 보편화되어 있고 시료 두께를 제어하며 양질의 TEM 시료를 만들 수 있는 다양한 가공기술들이 잘 축적되어 있다(McCaffrey, 1998). 이와 더불어 최근에 그 기술의 중요성이 크게 부각되고 있는 focused ion beam (FIB)을 활용한 박막 단면 시료 제작 기술은 그 활용 연구가 광범위하게 수행되고 있으며 기존에는 불가능했던 시료 제작 문제의 한계들을 뛰어넘고 있다(Li, 2006). 그러나 아직 일반 연구자들이 이러한 고가의 장비를 이용하기 위한 접근성과 보편성 측면에선 그 진입 장벽이 여전히 높다고 할 수 있다.

박막 단면 TEM 시료를 제작하는 주요 목적은 적층 구조 내의 구조 및 결함, 그리고 증착막의 성장 거동을 관찰하기 위함이다. 기판과 박막 간의 접착력이나 상호간의 기계적 물성이 유사할 경우엔 Si 기반의 시료 제작 기술을 그대로 적용하면 된다. 그러나 기판과 적층 박막의 기계적 물성 차이가 큰 경우엔 이러한 보편적 기술을 그대로 적용할 수 없다. 왜냐하면 단면 시료 제작의 전 과정이 기계적/물리적 연마 과정 안에서 구현되기 때문에 이들의 물성 차이가 연마 속도나 ion-milling 시 sputtering rate를 결정하여 적층 박막의 분리, 깨짐, 편마모 등의 현상이 발생하기 때문이다(Zilan, 2005). 그 대표적인 예로 sapphire (α -Al₂O₃) 기판 위에 증착된 GaN 박막을 들 수 있다. Sapphire의 경도와 파괴인성은 22 GPa과 2.5 MPa이며, GaN의 경도와 파괴인성은 12 GPa과 0.8 MPa로서 이들 간의 기계적 물성이 약 2배 이상 차이가 난다(Drory, 1996; Yonenage, 2002). 참고로 Si의 경도와 파괴인성은 9 GPa과 0.7 MPa로 GaN과 유사하다. GaN/sapphire의 박막 단면 시료 제작 시 기계적 연마 및 미세 연마 과정에서 쉽게 발생할 수 있는 현상은 두 물질의 연마 속도 차이에 의한 편마모와 경도가 더 큰 sapphire 기판의 깨짐, 경도가 약한 GaN 기판의 분리 등이 있다(Zilan, 2005). 이들 제작 공정 단계 이후 만들어진 샌드위치 형태의 단면 시료를 Cu 그리드에 수지접착제로 접착하고 ion-milling으로 천공을

본 연구는 교육과학기술부 기초기술연구회 STRM 협동과제인 "GaN 박막의 미세구조 및 특성평가(PG9052)"의 재정 지원을 받아 수행하였습니다.

* Correspondence should be addressed to Mr. Young-Min Kim, Division of Electron Microscopic Research, Korea Basic Science Institute, 52 Eoeun-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-333, Korea. Ph.: (042) 865-3947, Fax: (042) 865-3939, E-mail: mirage91@kbsi.re.kr

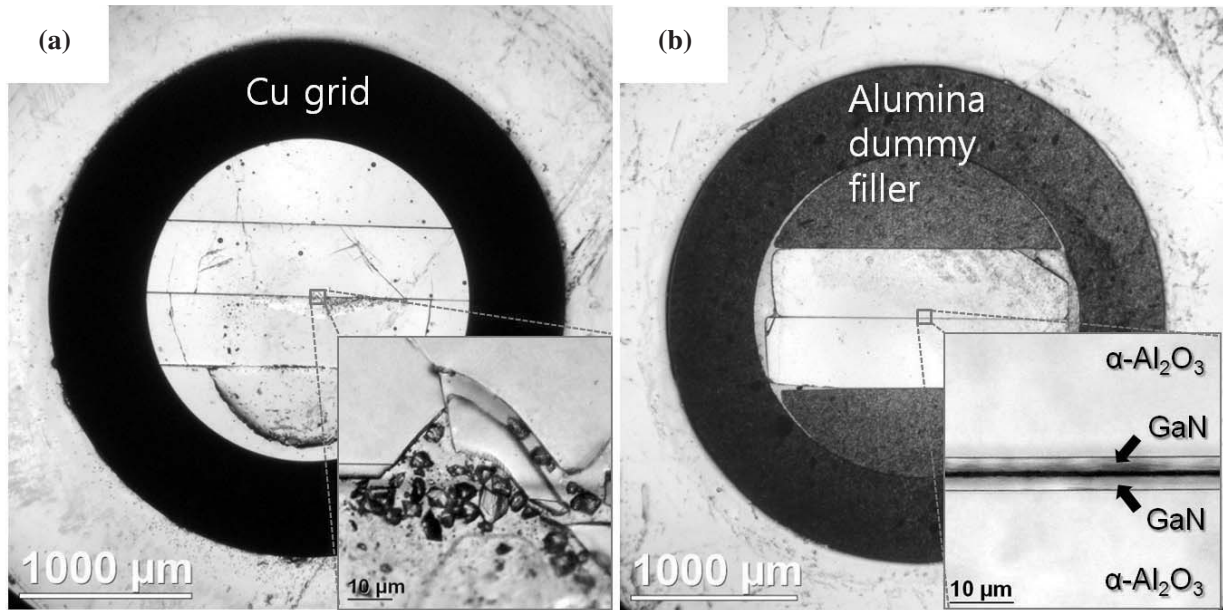


Fig. 1. Optical overviews of cross-sectional TEM specimens of GaN/sapphire substrate: Examples of (a) the specimen prepared by conventional wedge polishing process in which the deformation and damage of the system has often arisen and (b) the specimen which shows a mechanical damage-free prepared by the alumina dummy filler method in this study.

하게 되는데 (Weaver, 1997), 이 단계에선 sapphire 기판보다 GaN 박막과 수지접착제 그리고 지지대로 쓰인 Cu 그리드의 경도가 상대적으로 약하기 때문에 sputtering rate의 차이에 의한 편마모 혹은 막분리와 오염을 쉽게 야기하게 된다. 극단적인 경우 기판에 의한 영향들을 배제하기 위해서 시료 준비 과정에서 레이저를 이용하여 기판 부분을 제거하고 증착막 부분만을 관찰시료로 제작하는 방법이 있으나 (Zilan, 2005), 이러한 방법은 증착막 자체의 구조 연구에는 유효하지만 기판과 증착막 간의 계면 현상을 연구하는 데는 적용할 수 없다.

기계적 물성이 서로 크게 다른 재료들로 구성된 시스템의 단면 TEM 시편 준비를 위해 dummy filler를 활용하는 여러 방법들이 제안되어 왔다 (Goodhew, 1985; Newcomb, 1988; Strecker, 1993). 기계적/물리적 연마 과정에서 연마 속도를 이들 dummy filler가 결정하게 함으로써 연마면의 평탄도를 높이고 편마모를 방지하며, 저각/저에너지 ion-milling 시 dummy 외곽 frame이 shield 역할을 하게 함으로써 수지 접착막과 연성 박막의 우선적인 sputtering을 예방하는 효과를 도모할 수 있다. Strecker (1993)는 dummy filler를 알루미늄 세라믹 재료로 만들어 세라믹 복합 재료의 TEM 시편 준비에 처음 활용하였고 기계적 물성 차이가 큰 재료 시스템에도 적용할 수 있는 가능성을 제시하였다. 본 연구에서는 GaN/sapphire 기판의 적층 박막 시료에 대한 단면 TEM 시편 제작에 있어 Strecker (1993)가 제안했던 방법을 적용하여 그 가능성을 살펴보았다. 그리고 연성/취성

의 복합적인 기계적 성질로 구성된 시료들에 대한 보편적 적용을 위해 해당 시료 준비 과정에서 고려하여야 할 실험적 요인들을 고찰하였다.

실험에 사용된 시료는 400 μm 두께를 가진 sapphire (0001) 기판 위에 metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD)법을 적용하여 2 μm 두께의 GaN 층을 1,000도에 서 증착시켜 획득하였다. 고품질의 GaN 에피택셜 성장막을 얻기 위해 Nakamura (1991)에 의해 제안된 바와 같이 GaN 에피택셜 성장막과 sapphire 기판 사이엔 약 25 nm의 GaN buffer 층이 도입되었다. 분석에 사용한 투과전자현미경은 초고전압 투과전자현미경 (HVEM, ARM1300S, Jeol Ltd.)으로 관찰 가속전압은 1,250 keV였다. GaN/sapphire 시료는 일정한 크기로 절단하여 증착면을 마주보도록 G1 에폭시로 접착하여 전형적인 박막 단면 시료 준비를 위한 샌드위치 형태로 만들었다 (Weaver, 1997). 일반적인 썬치 형태의 단면 가공 방법에 있어선 작은 GaN/sapphire 샌드위치 절편을 Cu 그리드에 접착하여 이후의 미세 연마 및 ion-milling 과정을 거치게 되는데, 이러한 방법을 적용하면 이미 언급하였듯이 시료의 변형과 파손을 피하기 어렵게 된다 (Fig. 1(a)). 기계적 시편가공 과정에서 연마 속도를 제어하기 위해 알루미늄 dummy filler를 Fig. 2와 같이 제작하였다. 알루미늄 dummy filler는 3 mm 외경과 1.9 mm 내경의 구조를 가진 실린더 (Fig. 2(a))와 1.9 mm 외경에 w의 시료 삽입 폭을 가진 슬릿 (Fig. 2(c))으로 구성된다. 샌드위치 형태의 단면 시료는 삽입용 슬릿에 장착되는데 기판과 적층의 두께

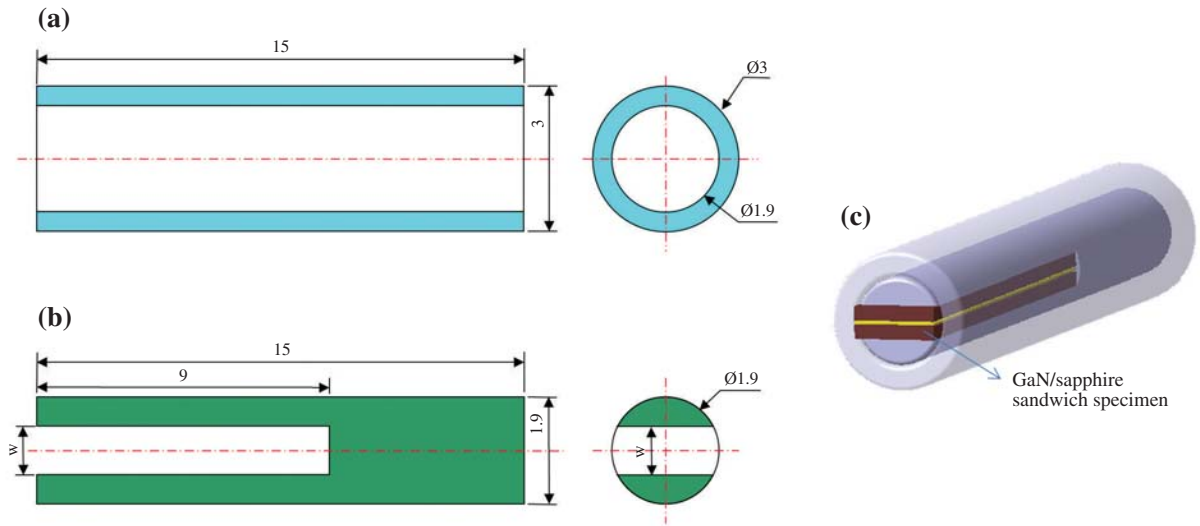


Fig. 2. Design of alumina dummy filler for the preparation of cross-sectional TEM specimen of GaN/sapphire sample: Drawings of (a) the cylinder frame and (b) the insertion-slit which are components of alumina dummy filler. (c) Geometrically schematic depiction as expected for the use of the method. The scale unit in this drawing is mm.

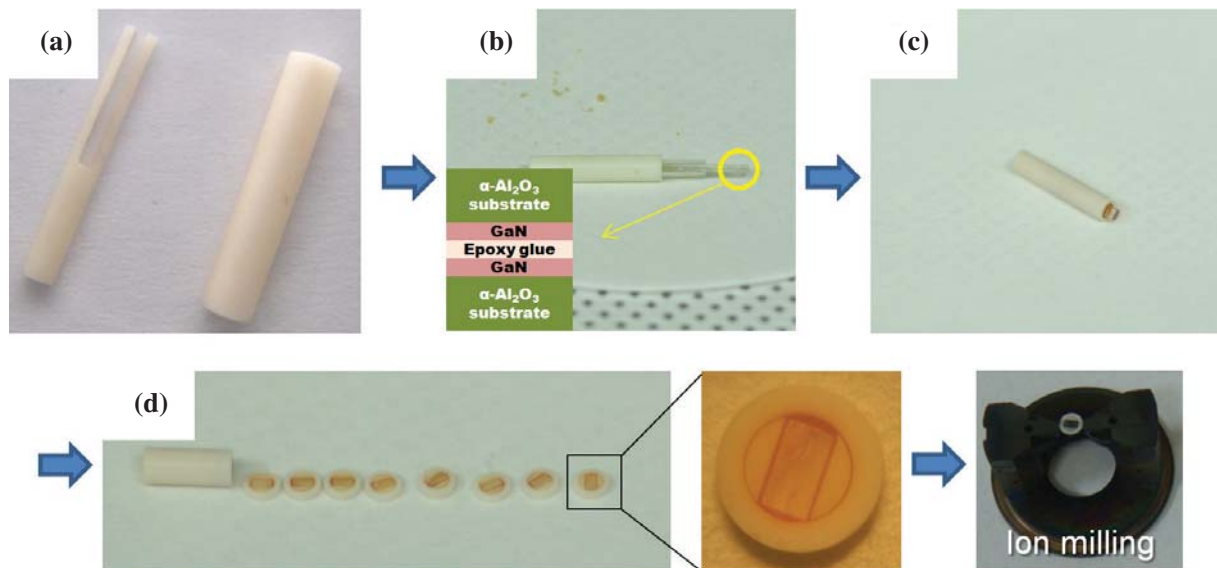


Fig. 3. Schematic representation of the sample preparation using alumina dummy filler in preparing a cross-sectional TEM specimen of GaN/sapphire sample.

에 따라 w 의 폭을 결정한다. 본 실험에선 $w=0.9$ mm인 슬릿을 사용하였으며 사진 dummy 제작 시 다양한 두께를 가진 슬릿을 제작하여 실험 상황에 맞게 적용할 수 있도록 준비하였다. 샌드위치 형태의 GaN/sapphire 시료를 슬릿에 장착한 후 예상되는 시료의 완성 형태를 Fig. 2(c)에 도식적으로 나타내었다.

샌드위치 형태의 단면 접합 시편에 대한 알루미늄 dummy filler 내의 삽입/접착 과정은 Fig. 3에 나타낸 과정을 따

른다. 먼저 Fig. 2의 도면대로 제작된 알루미늄 dummy 실린더와 슬릿을 준비하고(Fig. 3(a)), 샌드위치 형태로 수지 접착된 단면 시료(Fig. 3(b))를 슬릿에 끼워 넣고 G1 에폭시를 침투(infiltration)시킨다. 이후 시료에서 나오는 과잉의 G1 에폭시는 닦아내고 오븐에서 70도를 유지한 채 12시간 이상을 놔두게 되면, 접착제가 균일하게 침투되어 치밀하게 접착되고 기공이 거의 없는 시료를 얻을 수 있다(Fig. 3(c)). 만약 진공용기가 있을 경우 G1 에폭시 침투 후 진공용기에

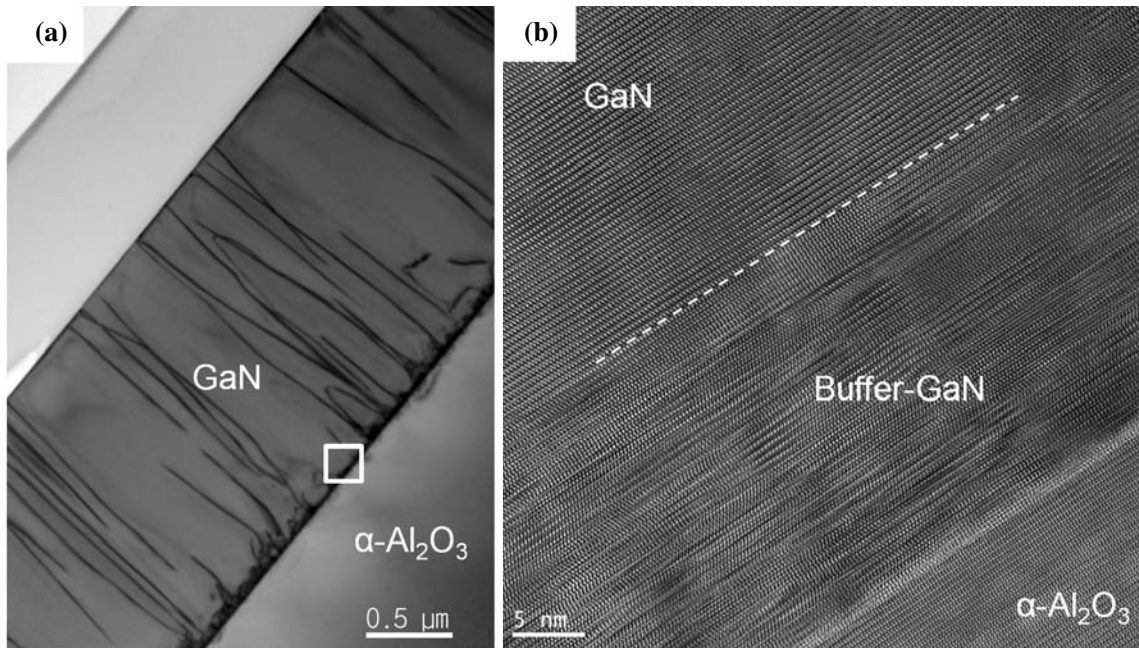


Fig. 4. TEM results of the cross-sectional TEM sample of GaN/sapphire prepared by the alumina dummy filler method. The solid-line square in (a) indicates the location of (b) in the sample.

서 진공을 걸어 dummy frame과 시료 사이에 수지 접착제의 균일한 침투를 도모할 수 있다면 시료 준비시간을 훨씬 더 단축할 수 있다. 균일하게 굳어진 시료/알루미나 dummy 시료를 diamond cutter를 사용하여 일정한 두께로 절단하고 Fig. 3(d)와 같은 시료 절편들을 만든다. 각각의 절편들은 전형적인 쉘기형태의 가공방법인 연마-미세연마-ion milling 과정에 따라 단면시료로 제작된다(Weaver, 1997).

본 실험 방법과 일반적인 쉘기 형태 가공 기법과의 유일한 차이는 일반적으로 사용하는 Cu 그리드의 사용을 배제하고 알루미나 dummy filler를 적용하는 것이다. 이를 통해 연마-미세연마 과정에서 나타나는 GaN/sapphire 박막 시료의 기계적 성질 차이로 인한 연마속도 차이를 균일하게 제어할 수 있기 때문에 평탄도가 높고 기계적 파손이 없는 양질의 시료 전처리가 가능하게 된다(Fig. 1(b)). 이후 고각/고에너지 ion-milling에 의한 시료 천공과 함께 비정질층 및 오염층 제거와 시료 평탄도를 높이기 위해 저각/저에너지 ion-milling을 하게 되는데, 일반적인 방법과 같이 Cu 그리드를 쓰면 sapphire 기판에 비해 금속 그리드와 GaN 및 수지 접착층의 sputtering rate가 상대적으로 커서 편마모 및 막분리 그리고 추가적인 오염이 발생한다. 이러한 현상들은 증착막의 온전한 보존을 불가능하게 하여 증착막 그리고 그들의 계면 구조 연구에 빈번한 오류를 야기시킨다. 반면 알루미나 dummy filler를 적용하게 되면 저각/저에너지 ion-milling 시 외곽부의 알루미나 dummy frame이 이온빔에 대한 shield 역할을 하게 되어 중앙부에서 연성 박막 및 수지

접착층의 우선적인 sputtering을 억제해 줌으로써 시료 준비 과정에서 빈번히 발생하는 실험적인 문제들의 배제가 가능하다. 본 실험 방법에 의해 준비된 Fig. 3(d)와 같은 시료를 연마-미세연마 과정을 거친 후 ion-milling을 하여 만든 GaN/sapphire 단면 시료에 대한 HRTEM 결과는 Fig. 4에 나타내었다. 앞서 언급한 바와 같은 기판 및 증착막 그리고 수지 접착막 간의 파손, 오염, 분리 등과 같은 시료제작 상의 문제들이 본 방법의 적용에 의해 효과적으로 배제되고 고분해능 투과전자현미경 연구에 충분한 균일도와 청정도를 가진 양질의 시편이 만들어짐을 확인할 수 있다. 이미 잘 알려져 있듯이 GaN 박막의 성장은 기판과의 결정학적 방위와 계면 에너지에 의해 그 성장 기구가 달라진다. 따라서 시료 준비 과정에서 이들 시스템의 온전한 보존은 구조 연구에 필수적이다. 이러한 관점에서 보면 시료 준비과정에서 sapphire 기판과 GaN buffer/증착막 간의 계면 사이에 선택적인 이온 빔 식각이 일어나지 않고 시료의 변형을 유발하지 않는 본 방법의 적용이 이들 계면에서 일어나는 구조적 상관관계 연구에 매우 효과적임을 알 수 있다.

본 연구 결과를 통해 알루미나 dummy filler를 적용하는 시료 준비 방법은 연마-미세연마 공정 간에 일어나는 기계적인 연마 속도를 균일하게 제어하고, 저각/저에너지 ion-milling 시 알루미나 외곽 frame에 의한 shield 효과로 연성 박막/수지 접착층의 우선적인 sputtering을 억제하여 양질의 박막 단면 TEM 시편을 만들 수 있음을 확인하였다. 따라서 본 실험에서 사용한 GaN/sapphire 단면 시료 외에 연성/취

성의 복합적 기계적 성질들을 가진 재료들로 구성된 시스템에도 본 방법이 매우 효과적으로 적용될 수 있으리라 기대한다. 여기서 한 가지 주지하여야 할 것은 dummy filler가 절연체이기 때문에 중/저전압 TEM을 활용한 HRTEM 연구 시 시료 charging이 발생할 수 있다는 것이다. 이러한 효과는 가속전압이 높아지면 감소하게 된다(Egerton, 2004; Kim, 2008). 따라서 HVEM과 같은 장비환경하에서는 특별한 전도성 처리가 요하지 않으나, 중/저전압 TEM 관찰 시에 시료 charging 현상이 발생할 경우 얇은 carbon 코팅과 같은 전도성 후처리를 해주면 이러한 효과를 억제할 수 있다.

참 고 문 헌

- Barna Á, Pécz B, Menyhard M: TEM sample preparation by ion milling/amorphization. *Micron* 30 : 267-276, 1999.
- Drory MD, Ager III JW, Suski T, Grzegory I, Porowski S: Hardness and fracture toughness of bulk single crystal gallium nitride. *Appl Phys Lett* 69 : 4044-4046, 1996.
- Eberg E, Monsen ÅF, Tybell T, van Helvoort ATJ, Holmestad R: Comparison of TEM specimen preparation of perovskite thin films by tripod polishing and conventional ion milling. *J Electron Microsc* 57 : 175-179, 2008.
- Egerton RF, Malac PLM: Radiation damage in the TEM and SEM. *Micron* 35 : 399-409, 2004.
- Goodhew PJ: Thin foil preparation for electron microscopy. In: Glauert AM, ed, *Practical Methods in Electron Microscopy*, Elsevier, New York, 1985.
- Kim YM, Hong SH, Chung SY, Lee JY, Kim YS, Kim YJ: Practical approaches to minimize specimen charging effect in HRTEM. Abstract book: the 39th Spring Meeting of Korean Microscopy Society (Daegu, May 28-30th), pp. 63-67, 2008.
- Li J, Malis T, Dionne S: Recent advances in FIB-TEM specimen preparation techniques. *Mater Charact* 57 : 64-70, 2006.
- Mccaffrey JP, Hulse J: Transmitted color and interference fringes for TEM sample preparation of silicon. *Micron* 29 : 139-144, 1998.
- Nakamura S: GaN growth using GaN buffer layer. *Japanese J Appl Phys* 30 : L1705-L1707, 1991.
- Newcomb SB, Baxter CS, Bithell EG: The preparation of cross-sectional TEM specimens. *Inst Phys Conf Ser* 93 : 43, 1988.
- Okuno H, Takeguchi M, Mitsuishi K, Guo XJ, Furuya K: Sample preparation of GaN-based materials on a sapphire substrate for STEM analysis. *J Electron Microsc* 57 : 1-5, 2008.
- Strecker A, Salzberger U, Mayer J: Specimen preparation for transmission electron microscopy: Reliable method for cross-sections and brittle materials. *Prakt Metallogr* 30 : 482-495, 1993.
- Weaver L: Cross-section TEM sample preparation of multilayer and poorly adhering films. *Microsc Res Tech* 36 : 368-371, 1997.
- Yonenage I: Hardness of bulk single-crystal GaN and AlN. *MRS Internet J. Nitride Semicond Res* 7 : 6, 2002.
- Zilan L, Xiaodong H, Ke C, Ruijuan N, Xuhui L, Xiaoping Z, Tongjun Y, Bei Z, Song C, Zhijian Y, Zhizhong C, Guoyi Z: Preparation of GaN-based cross-sectional TEM specimens by laser lift-off. *Micron* 36 : 281-284, 2005.