

# 가속기 백색광 X-Ray Topography를 이용한 CVD 단결정 다이아몬드 내부 전위 분석

유영재, 정성민, 배시영 

한국세라믹기술원 에너지환경본부

## Dislocation Analysis of CVD Single Crystal Diamond Using Synchrotron White Beam X-Ray Topography

Yeong-Jae Yu, Seong-Min Jeong, and Si-Young Bae

Energy and Environment Division, Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology, Jinju 52851, Korea

(Received January 31, 2019; Accepted February 12, 2019)

**Abstract:** Single-crystal diamond obtained by chemical vapor deposition (CVD) exhibits great potential for use in next-generation power devices. Low defect density is required for the use of such power devices in high-power operations; however, plastic deformation and lattice strain increase the dislocation density during diamond growth by CVD. Therefore, characterization of the dislocations in CVD diamond is essential to ensure the growth of high-quality diamond. In this work, we analyze the characteristics of the dislocations in CVD diamond through synchrotron white beam X-ray topography. In estimate, many threading edge dislocations and five mixed dislocations were identified over the whole surface.

**Keywords:** Diamond, CVD, Dislocation, X-ray topography

### 1. 서론

다이아몬드(diamond)는 높은 열전도도(22 W/cm·K), 높은 항복전압(>10 MV/cm) 및 높은 전자 이동도(4,500 cm<sup>2</sup>/Vs)의 물성으로 차세대 전력소자(power devices)를 위한 재료로 주목을 받고 있다 [1]. 최근에, 120 GHz의 차단 주파수와 1 GHz에서 2.1 W/mm의 전력 밀도를 갖는 다이아몬드 전계 효과 트랜지스터의 높은 RF 전력 성능이 보고되기도 했다 [2,3].

그러나 다이아몬드 결정에 존재하는 전위(dislocation) 및 적층결함(stacking fault)으로 누설 전류(leakage cur-

rent)가 증가하고 항복 전압이 감소해 전력소자의 성능이 떨어지는 문제점이 있다 [4-6]. 또한, 전위는 변형장(strain field)을 야기해 광학 복굴절을 생성하고 광전파에 영향을 미치며 [7] 질소결함(nitrogen-vacancy)과 같은 발광결함(luminescent defect)에 영향을 주어 전자스핀공명(electron spin resonance)의 확대를 유도한다 [8]. 한편, 도핑농도를 제어할 수 있고 고순도 성장이 가능한 CVD (chemical vapor deposition) 성장법이 HPHT (high pressure high temperature) 성장법보다 응용 가능성이 더 높지만 CVD 다이아몬드 결정 내부 결함에 대한 체계적인 연구가 아직 부족하다 [9,10]. 따라서 CVD 다이아몬드 결정 내부에 존재하는 전위의 특성을 이해하고 그 밀도를 낮추는 방법을 찾는 것이 중요하다.

가속기 백색광 XRT (synchrotron white beam X-ray topography, SWBXRT)는 반도체용 기판과 같

✉ Si-Young Bae; sybae@kicet.re.kr

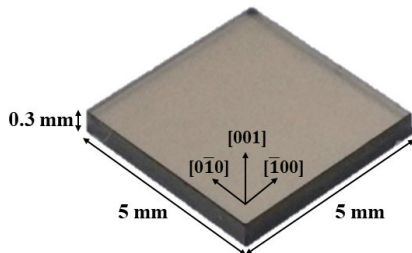
은 대면적 크기 단결정 내부에 존재하는 전위들의 버거스벡터(burgers vector, **b**)를 결정하고 정량적인 분포값을 도출하는 데 효과적이다. 본 연구에서 CVD 다이아몬드의 결정 품질을 평가하고 결정 내에 존재하는 전위들의 분포와 **b**의 종류를 구분하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에서 사용한 CVD 다이아몬드는 그림 1과 같이 정사각형 모양의 양면이 가공된 5×5×0.3 mm<sup>3</sup> 크기의 단결정이며 일본의 EDP사로부터 제공받았다. HPHT로 성장된 {100} 면의 Ib 타입의 다이아몬드를 종자결정으로 ASTeX 마이크로웨이브 플라즈마 CVD 장비(2.45 GHz, 5 kW, Seki Technotron Corporation, Japan)를 사용해 성장했다. 메탄과 수소를 각각 60, 500 sccm의 속도로 주입, 압력은 21 kPa, 그리고 기판의 온도는 대략 1,100~1,200°C이다.

CVD 다이아몬드의 결정성을 확인하기 위해 라만 분광법(Raman spectroscopy)을 이용하여 분석하였다. 라만 장비는 WiTec사의 Alpha 300S 모델이며 1.0 cm<sup>-1</sup> 분해능과 532 nm 단파장 레이저 소스를 사용한다. 또한, 결정성과 결정 품질을 확인하기 위해 high-resolution X-ray diffraction (HR-XRD)을 활용했다. Rigaku사의 Smartlab 모델이고 Cu K $\alpha$  방사원과 Ge (220) 4배 단색화장치(four-fold monochromator)가 적용되었다.

그리고 CVD 다이아몬드 내부에 존재하는 전위들의 특성을 분석하기 위해 포항방사광가속기의 9D line에서 SWBXRt를 측정했다. 본 측정에서 4~38 keV의 백색광 X-ray를 사용했고 다이아몬드의 라우에 회절(laue diffraction) 시뮬레이션을 통해 CVD 다이아몬드의 회절 패턴을 예측해 각 패턴들의 회절 벡터(diffraction vector, **g**)를 구했다. X-ray 감광필름(Agfa D2)을 X-ray



**Fig. 1.** Camera image of CVD single-crystal diamond. Size of sample is 5.0×5.0×0.3 mm<sup>3</sup>.

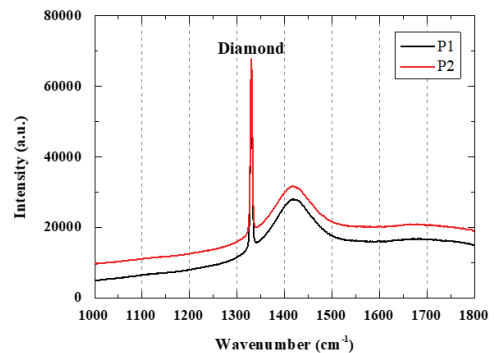
detector에 부착해 회절 패턴을 기록했고 현상시킨 필름을 현미경으로 관찰하여 전위들의 특성을 분석했다.

## 3. 결과 및 고찰

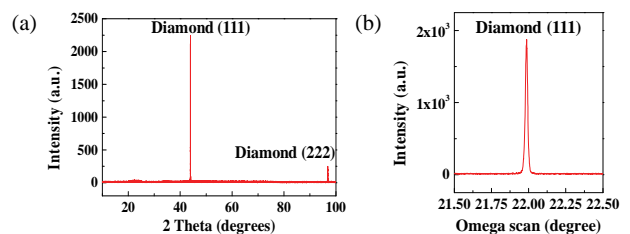
그림 2는 CVD 다이아몬드의 Visible-Raman 측정 결과이다. (001)면의 총 2 포인트를 측정했고 1,332 cm<sup>-1</sup>에서 강한 peak이 나타났다. 문헌에 따르면 [11], Raman 측정에서 다이아몬드 peak는 1,333 cm<sup>-1</sup>으로 본 Raman 측정 결과와 문헌 값이 거의 일치했고 단결정 다이아몬드가 성장했음을 확인했다.

그림 3(a), (b)는 각각 CVD 다이아몬드의 XRD의 2theta와 (111)면의 omega scan 결과이다. 그림 3(a)의 2theta 패턴은 일반적인 단결정 다이아몬드와 같이 (111)과 (222)면에서 강한 peak를 보이면서, CVD 다이아몬드 샘플의 결정성을 확인할 수 있었다. 그림 3(b)의 omega scan peak의 반치폭(full width at half maximum, FWHM)은 70.38 arcsec로 CVD 다이아몬드 샘플의 우수한 결정 품질을 확인하였다.

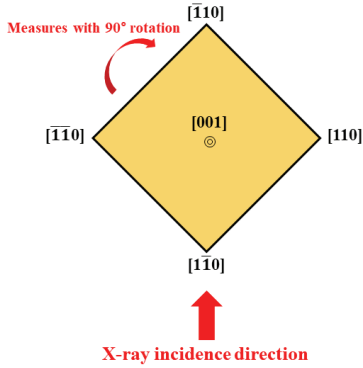
CVD 다이아몬드의 SWBXRt 측정은 샘플 표면의 전



**Fig. 2.** Visible Raman spectra (wavelength: 532 nm) obtained from (001) surface of the CVD diamond, confirming the growth of single-crystalline diamond.



**Fig. 3.** XRD peaks of the CVD diamond single crystal. (a) 2 theta and (b) omega scan.



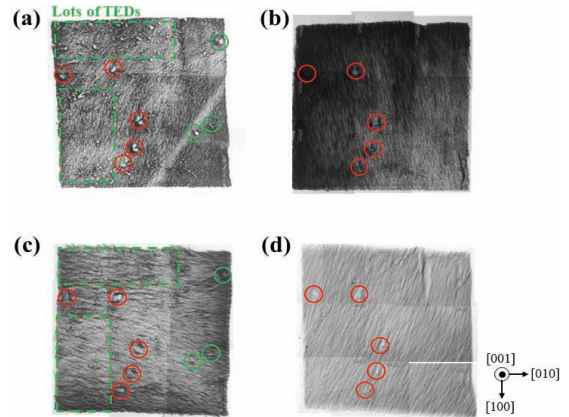
**Fig. 4.** Top-view schematic of the setup for analyzing dislocations at the CVD diamond which was measured by rotating 90° clockwise with respect to the [110] direction.

위를 분석하는 데 효과적인 grazing incidence mode 방법을 적용하여 진행하였다. 그림 4는 X-ray의 입사 방향과 다이아몬드 기판의 위치 및 면방향을 보여주는 모식도이다. CVD 다이아몬드의 [1 $\bar{1}$ 0] 방향을 시작으로 시계 방향으로 90°를 돌려가며 측정했다. 이는 다양한 회절 벡터( $g$ )의 이미지를 얻어 CVD 다이아몬드 내에 존재하는 여러 전위들의 버거스벡터( $b$ )를 구분하기 위함이다. 비가시 판별기준(invisibility criteria)에 따라  $g \cdot b = 0$ 일 경우, 전위들의 형태가 보이지 않는 반면,  $g \cdot b \neq 0$ 의 조건을 만족시킬 경우 전위들이 보이게 된다. 또한, 다이아몬드에서 완전한 형태의 전위들의  $b$ 는  $a/2\langle 110 \rangle$  ( $a$ =다이아몬드의 격자상수)로 알려져 있다 [12]. 예를 들어, 다이아몬드 내 전위가  $g = (113)$ 에서 나타나고  $g = (1\bar{1}3)$ 에서 나타나지 않을 경우 이 전위의  $b$ 는  $a/2[110]$ 라 판단할 수 있다. 반대로,  $g = (113)$ 에서 나타나지 않고  $g = (1\bar{1}3)$ 에서 나타날 경우 이 전위의  $b$ 는  $a/2[1\bar{1}0]$ 이다.

전위들은 ‘칼날(edge)’, ‘나선(screw)’ 그리고 ‘혼합(mixed)’ 세 종류로 구분할 수 있다. 칼날 전위의 경우  $b$ 가 전위의 방향( $t$ )과 수직이다. 반면 나선 전위는  $b$ 와  $t$ 가 수평인 경우다. 혼합 전위는  $b$ 의 방향과  $t$ 가 수직이거나 수평이 아닌 경우이며  $b$ 와  $t$  사이의 각도( $\theta_{bt}$ )에 따라 혼합 전위( $\theta_{bt}$ )로 정의한다. CVD 다이아몬드를 소자에 적용할 경우 누설전류에 주요 영향을 끼치는 전위들의 방향은 [001]이며 이 전위들의 특성을 분석하는 것은 중요하다. 다이아몬드 내에 존재할 수 있는 [001] 방향의 전위들은 칼날 전위와 혼합 전위(45°)이다 [13]. 칼날 전위들의  $b$ 는  $a/2 [110]$ 와  $a/2 [1\bar{1}0]$ 이며 혼합 전위(45°)들의  $b$ 는  $a/2 [101]$ ,  $a/2 [\bar{1}01]$ ,  $a/2 [011]$  또는  $a/2 [0\bar{1}1]$ 이다. 이 전위들의  $b$ 와  $g$ 의 조합과

**Table 1.** Combinations of the diffraction vector ( $g$ ), burgers vector ( $b$ ) and SWBXR image contrast for the dislocations in the diamond structure.

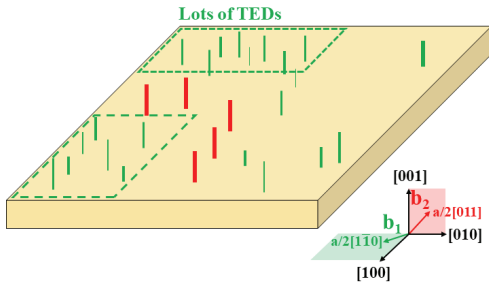
Diffraction vector ( $g$ )	Burgers vector ( $b$ )		
	$a/2 [110]$	$a/2 [1\bar{1}0]$	$a/2 [101], a/2 [\bar{1}01], a/2 [011], a/2 [0\bar{1}1]$
113	Exist	<b>Non</b>	Exist
$\bar{1}13$	<b>Non</b>	Exist	Exist
Dislocation direction ( $t$ )	[001]		
Type of dislocation	Edge	Mixed (45°)	



**Fig. 5.** X-ray topography projection images of (001)-oriented CVD single-crystal CVD diamond for (a)  $g = (1\bar{1}3)$ , (b)  $g = (113)$ , (c)  $g = (\bar{1}13)$ , and (d)  $g = (\bar{1}\bar{1}3)$ .

SWBXR 이미지내 존재 여부를 표 1에 정리하였다.

그림 5는 [001] 방향의 CVD 단결정 다이아몬드의 각기 다른  $g$ 를 가진 네 종류의 SWBXR 이미지를 보여준다. 각각의 회절 벡터는 (a)  $g = (1\bar{1}3)$ , (b)  $g = (113)$ , (c)  $g = (\bar{1}13)$ , and (d)  $g = (\bar{1}\bar{1}3)$ 이다. 본 이미지를 통해 CVD 다이아몬드 샘플 내부에 선들의 다발로 나타난 기저면 전위 결함(basal plane dislocation)을 비롯해 많은 칼날 전위와 혼합 전위(45°)들이 존재함을 알 수 있다. 표 1의 조합을 적용했을 때 대표적인 다수의 칼날 전위( $b = a/2 [1\bar{1}0]$ )와 혼합 전위(45°)를 각각 녹색과 적색으로 그림 5에 표시했고  $b = a/2 [110]$ 의 칼날 전위는 나타나지 않았다. 그림 6은 그림 5에 표시한 CVD 다이아몬드내 존재하는 [001] 방향의 전위들의 위치와 형태를 간략히 나타낸 모식도이다. 녹색은 칼날 전위, 적색은 혼합 전위(45°)를 나타내며 각각의 버거스벡터를  $b_1 = a/2 [1\bar{1}0]$ 과  $b_2 = a/2 [011]$ 로 표



**Fig. 6.** Three-dimensional schematic diagram showing threading edge (green) and mixed (red) dislocations ( $t=[001]$ ) and their burgers vectors ( $b_1$  and  $b_2$ ) present in the CVD diamond.

시켰다. 한편, 본 샘플에 존재하는 모든 전위들의 전위 밀도는 대략  $5.8 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ 이고 HPHT 다이아몬드 전위 밀도  $< 10^3 \text{ cm}^{-2}$ 보다 훨씬 많은 것으로 분석되었다.

#### 4. 결론

CVD 단결정 다이아몬드 내에 존재하는 전위들의 특성을 SWBXRT를 통해 분석하였다. 특히, [001] 방향의 전위들이 소자 적용 시 누설 전류에 큰 영향을 끼치므로 다이아몬드 내에 존재할 수 있는 [001] 방향의 칼날 전위( $b = a/2 [1\bar{1}0]$ )와 혼합 전위( $45^\circ$ )를 구분했다. 그 결과  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  크기의 CVD 다이아몬드 내부에 많은 칼날 전위들과 5개의 혼합 전위( $45^\circ$ )들이 관찰되었다. 다이아몬드는 CVD 성장 중에 계면의 소성 변형과 격자 변형에 의한 부피 증가로 전위밀도가 증가한다. 따라서 고품질 다이아몬드를 성장시키기 위해서 CVD 다이아몬드 내에 존재하는 전위들의 특성 분석이 필수적이다. 이에, SWBXRT는 전위들의 버거스벡터( $b$ )와 방향( $t$ )을 평가할 수 있기에 단결정 다이아몬드의 전위 분석에 매우 유용하게 적용될 수 있음을 확인하였다.

#### ORCID

Si-Young Bae

<https://orcid.org/0000-0002-8284-0649>

#### 감사의 글

본 연구는 한국세라믹기술원 세라믹전략기술개발사업의 연구비 지원으로 수행되었습니다. 포항방사광가속

기에서의 실험은 과학기술정보통신부와 포항공대의 지원을 받았습니다.

#### REFERENCES

- [1] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikström, D. J. Twitchen, A. J. Whitehead, S. E. Coe, and G. A. Scarsbrook, *Science*, **297**, 1670 (2002). [DOI: <https://doi.org/10.1126/science.1074374>]
- [2] K. Ueda, M. Kasu, Y. Yamauchi, T. Makimoto, M. Schwitters, D. J. Twitchen, G. A. Scarsbrook, and S. E. Coe, *IEEE Electron Device Lett.*, **27**, 570 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.1109/LED.2006.876325>]
- [3] M. Kasu, K. Ueda, H. Ye, Y. Yamauchi, S. Sasaki, and T. Makimoto, *Electron. Lett.*, **41**, 1249 (2005). [DOI: <https://doi.org/10.1049/el:20053194>]
- [4] M. Kasu, M. Kubovic, A. Aleksov, N. Teofilov, Y. Taniyasu, R. Sauer, E. Kohn, T. Makimoto, and N. Kobayashi, *Diamond Relat. Mater.*, **13**, 226 (2004). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2003.10.025>]
- [5] S. Ohmagari, T. Teraji, and Y. Koide, *J. Appl. Phys.*, **110**, 056105 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3626791>]
- [6] M. Saremi, R. Hathwar, M. Dutta, F.A.M. Koeck, R. J. Nemanich, S. Chowdhury, and S. M. Goodnick, *Appl. Phys. Lett.*, **111**, 043507 (2017). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.4986756>]
- [7] L.T.M. Hoa, T. Ouisse, D. Chaussende, M. Naamoun, A. Tallaire, and J. Achard, *Cryst. Growth Des.*, **14**, 5761 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.1021/cg5010193>]
- [8] L. Rondin, J. P. Tetienne, T. Hingant, J. F. Roch, P. Maletinsky, and V. Jacques, *Rep. Prog. Phys.*, **77**, 056503 (2014). [DOI: <https://doi.org/10.1088/0034-4885/77/5/056503>]
- [9] J. Achard, F. Silva, A. Tallaire, X. Bonnin, G. Lombardi, K. Hassouni, and A. Gicquel, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **40**, 6175 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/20/S04>]
- [10] N. Tranchant, M. Nešladek, D. Tromson, Z. Remes, A. Bogdan, and P. Bergonzo, *Phys. Status Solidi A*, **204**, 3023 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.1002/pssa.200776342>]
- [11] S. A. Solin and A. K. Ramdas, *Phys. Rev. B*, **1**, 1687 (1970). [DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.1.1687>]
- [12] J. P. Hirth and J. Lothe, *Theory of Dislocations* (McGraw-Hill, New York, 1968) p. 285.
- [13] Y. Kato, H. Umezawa, H. Yamaguchi, and S. Shikata, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **51**, 090103 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1143/JJAP.51.090103>]