

이중 이온빔 스퍼터링 방식을 사용한 보조 이온빔의 Ar/O₂ 가스 유량에 따른 Ta₂O₅ 박막의 제조 및 특성분석

윤석규[†] · 김희경* · 김근영 · 김명진* · 이형만* · 이상현** · 황보창권** · 윤대호

성균관대학교 신소재공학과
*전자부품연구원 광부품연구센터
**인하대학교 물리학과

(2003년 10월 17일 접수; 2003년 11월 26일 승인)

Characteristics Analysis and Manufacture of Ta₂O₅ Thin Films Prepared by Dual Ion-beam Sputtering Deposition with Change of Ar/O₂ Gas Flow Rate of Assist Ion Beam

Seok-Gyu Yoon,[†] Hwekyung Kim,* Geun-Young Kim, Myoung-Jin Kim,* Hyung-Man Lee,* Sang-Hyun Lee,** Chang-Kwon Hwangbo,** and Dae-Ho Yoon

Department of Advanced Materials Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon 440-746, Korea

*Optical Telecommunication Research Center, Korea Electronics Technology Institute, Pyungtaek 451-865, Korea

**Department of Physics, Inha University, Incheon 402-751, Korea

(Received October 17, 2003; Accepted November 26, 2003)

초 록

이중 이온빔 스퍼터링(Dual ion-beam sputtering)을 사용하여 보조이온건의 Ar/O₂ 가스유량 변화에 따라 Si-(111) 기판과 glass에 Ta₂O₅ 박막을 증착시켰다. 보조 이온층의 산소 가스량의 비가 감소함에 따라서 증착되는 Ta₂O₅ 박막의 성장속도는 감소하였으며, 굴절률은 O₂ 가스의 양이 0~12 sccm인 범위에서 2.09(at 1550 nm)로 일정한 값을 나타내었다. Ar:O₂가 3 : 12인 조건에서 화학양론 조성인 Ta₂O₅를 형성하였으며, 표면 거칠기도 가장 작은 값을 나타내었다.

ABSTRACT

The Ta₂O₅ thin film was deposited on Si-(111) and glass substrate with the change of Ar:O₂ gas flow rate in the assist ion gun by the Dual Ion-Beam Sputtering (DIBS). As the O₂ gas flow of the assist ion gun was decreased, the deposition rate of the thin films decreased. The refractive index was fixed (2.11, at 1550 nm) without regarding to O₂ gas flow of the range 3~12 sccm in assist ion gun. The condition of Ar:O₂=3 : 12 was formatted stoichiometry composition of Ta₂O₅ and the rms roughness was small (0.183 nm).

Key words : Ta₂O₅, Dual ion beam sputtering, Refractive index, Ar:O₂, Roughness

1. 서 론

최근 광학 박막은 광, 전자 산업의 성장과 함께 카메라 렌즈의 무반사 코팅에서부터 레이저 반사경, 광통신용 Wavelength Division Multiplexing (WDM) 필터에 이르기까지 빛의 간섭을 이용한 광학박막의 코팅은 폭 넓게 이용되고 있다.^{1,2)} 이러한 광학 박막은 광학 소자 위의 유전체로 이루어진 고굴절률 물질과 저굴절률 물질을 교번하여 쌓아 서로 다른 매질 사이의 경계면에서 일어나는 반사 및 투과되는 빛의 간섭효과를 이용하는 것이며 주로 다층의 박막계를 사용한다.³⁾

대부분의 광학 박막은 진공중에서 열저항 방법이나 전자총에 의한 방법으로 증착하고자 하는 물질을 녹여서 기판위에 증착시킨다. 일반적으로 상온에서 증발원으로부터 열 증발한 물질은 낮은 이동도를 가지며, 이러한 증착조건에서 성장시킨 박막은 기둥구조(columnar structure)를 가지며 기공(void)이 많은 상태가 된다. 박막의 미세한 기공은 대기중의 물을 흡수하여 박막의 광학적, 기계적 특성을 변화시키며 수명을 단축시킨다.^{4,5)} 또한 박막에 존재하는 잔류 변형력은 공기, 열적 충격에 노출되었을 때 박막의 수명을 단축시키는 원인이 되며 박막의 기둥 방향이 기판과 수직하지 않으면 박막 성장시 비등방성 성장으로 인하여 다층 박막 설계시에 예상하는 박막의 등방성을 벗어나게 되어 증착된 박막이 설계치와 차이가 나거나 잔류응력이 발생하여 박막이 깨지는 경우가 발생한다.⁶⁻⁸⁾ 이와 같은 문제점은 고 에너지를 갖는 입자를 이

[†]Corresponding author : Seok-Gyu Yoon
E-mail : sgyoon@skku.edu
Tel : +82-31-290-7388 Fax : +82-31-290-7371

용한 이온 충격과 기판 가열 등의 방법으로 성장중인 박막 입자의 이동도를 높임으로써 해결 할 수 있다. 박막 성장시에 기판의 온도를 증가시키면 증착되는 물질의 이동도가 증가하여 위와 같은 문제를 해결 할 수 있으나, 다층박막 증착의 경우 증착 후 기판의 온도를 상온까지 내릴 때 기판과 증착된 박막 물질간의 열 응력에 의해 박막에 균열이나 파괴가 일어난다. 또한 기판의 열변형 온도가 낮은 플라스틱과 같은 폴리머 계열의 기판 등에는 적용할 수 없다.

기판의 온도를 높이 올리지 않고 박막의 기동구조를 제거·감소시키는 방법에는 박막이 증착되고 있는 동안 이온들로 박막에 충격을 주어 박막의 기동구조를 깨뜨리는 전자빔(E-beam) 가열방식과 이온빔이 보조로서 이루어진 이온빔 보조 증착법(Ion-Beam Assisted Deposition, IBAD)과 이온빔 스퍼터링과 보조이온건으로 이루어진 이중 이온빔 스퍼터링 증착법(Dual Ion-Beam Sputtering Deposition, DIBSD)이 널리 사용되고 있다. 이와 같은 방법을 사용하면 낮은 기판온도에서 제작한 박막에서도 기판온도를 올려서 증착시킨 것과 같은 효과를 얻을 수 있으며, 특히 고정밀의 WDM 소자나 광학 유리, 플라스틱과 같은 폴리머 계열의 기판에도 증착시킬 수 있다.^{9,10)}

따라서 본 연구에서는 이중 이온빔 스퍼터링을 사용하여 Ta₂O₅를 증착시켰고, 보조 이온의 Ar:O₂ 가스량의 변화로서 광학적, 구조적 특성을 비교 분석하여 WDM 제작을 위한 다층 박막 증착시 보다 우수한 증착 조건을 확립하고자 하였으며, 증착된 Ta₂O₅ 박막의 특성에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용한 Dual Ion Beam Sputtering (DIBS) 증착 장비의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 이중 이온빔 스퍼터링 장치는 크게 진공 펌프들로 이루어진 진공부, RF 이온총 등으로 이루어진 증착부와 박막제어부로 구성되어 있다. 진공 펌프는 저진공 로타리 펌프와 고진공용 cryo 펌프가 사용되며 진공도는 convectron gauge와 ion

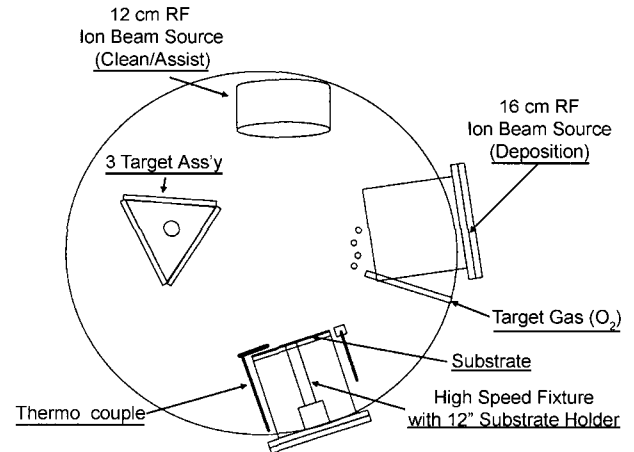


Fig. 1. Schematic diagram of dual ion-beam sputtering system.

gauge를 사용하여 측정하였다. 사용되는 RF 이온총은 Kaufman형 이온총으로 방전 챔버 내로 주입된 가스가 RF 파워에 의하여 플라즈마가 생성되고, 3개의 그리드 사이의 전압차에 의하여 양이온만이 가속되어 이온빔의 형태로 조사된다.¹¹⁾ 타겟 물질과 기판이 양전하로 대전되는 것을 방지하기 위하여 Radio Frequency Neutralizer (RFN) 가 스퍼터링 RF 이온총과 보조 증착 RF 이온총에 각각 장착되었다. 타겟 물질은 지름이 14 inch 원형의 Tantalum (Ta, 99.95%)을 사용하였다. 본 실험 조건을 Table 1에 나타낸것과 같이 주 이온빔과 보조 이온빔의 전압과 전류는 각각 1250 V, 600 mA와 550 V, 150 mA이었으며, 주 이온빔의 Ar 가스는 18 sccm의 일정한 양으로 흘러주었으며, reactive gas(O₂)는 18 sccm으로 흘러주었다. 기판의 온도는 100°C로 고정하여 보조 이온빔의 Ar:O₂ 가스의 유량비에 따라 Ta₂O₅ 박막을 광학적 특성과 물리적 특성을 조사하기 위하여 corning glass와 Si-(111) 기판위에 각각 1시간 증착시켰다.

증착된 Ta₂O₅ 박막의 광학적 특성을 조사하기 위하여 spectrophotometry를 사용하여 400~2000 nm 범위에서 측정된 후 포락선 방법¹²⁾을 이용하여 1550 nm에서 굴절률(*n*)과 소멸계수(*k*)를 얻었다. Scanning Electron Microscopy

Table 1. The Process Conditions Used for the Deposition of the Ta₂O₅ Films

Sample	First ion beam			Assist ion beam			Substrate temp. (°C)
	Beam voltage (V)	Beam current (A)	Ar gas flow (sccm)	Beam voltage (V)	Beam current (A)	Gas flow (sccm) Ar O ₂	
# 1						0 15	
# 2						3 12	
# 3	1250	600	18	550	150	6 9	100
# 4						9 6	
# 5						12 3	
# 6						15 0	

(SEM)를 이용하여 증착된 박막의 단면을 관찰하여 증착 속도를 관찰하였으며, X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS)를 이용하여 박막의 binding energy와 stoichiometry 조성을 관찰하였다. 또한 Atomic Force Microscopy (AFM)를 이용하여 박막의 표면 거칠기를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

광통신용 WDM 소자로 사용되기 위한 Ta₂O₅ 다층 박막의 제조시에 증착되는 비정질 막의 화학양론적 조성은 박막 형성시 밀도가 조밀한 막을 형성할 수 있으며, 광손실을 최소화 시키며 굴절률을 안정화 하는데 중요하다. 박막 제조시 많은 변수가 존재하나 본 연구에서는 이중 이온빔을 사용하여 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량을 변화하여 다층 박막 증착시 보다 우수한 증착조건을 확립하고자 하였으며, 증착된 Ta₂O₅ 박막의 특성을 조사 비교하였다.

Fig. 2는 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량이 0:15~15:0까지 변화함에 따른 Ta₂O₅ 박막의 증착률을 나타내었다. Ar/O₂의 가스유량비 감소 즉, Ar 가스량이 증가함에 따라 Ta₂O₅ 박막의 증착률은 1.14 μm/h에서 0.96 μm/h으로 연속적으로 감소하였는데 원인은 다음 두 가지로 나눌 수 있다. 첫째, 박막증착시 산소 가스는 타겟에서 기관으로 스퍼터된 Ta 입자가 기관 표면에서 산소 이온과 결합하여 기관에 Ta₂O₅를 증착하게 된다. 보조 이온총의 산소 가스량 감소는 기관으로 향하는 산소 이온양의 감소를 가져온다. 타겟에서 기관으로 향하는 Ta 이온에 비하여 상대적으로 산소이온의 감소에 의해 기관 표면에서 결합하는 Ta₂O₅ 양이 감소하여 증착률이 감소한 것으로 보여진다. 다른 한 가지는, 보조 이온총의 아르곤 가스량의 증가에 의해 기관으로 향하는 Ar 이온의 양은 증가한다. 보조 이

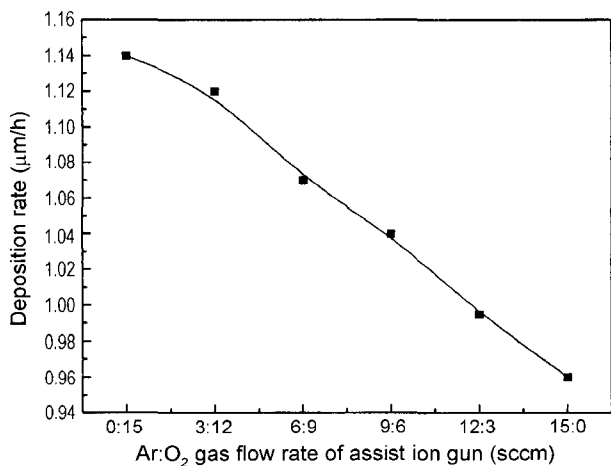


Fig. 2. Deposition rate of Ta₂O₅ thin films as a function of Ar:O₂ gas flow rate of assist ion gun.

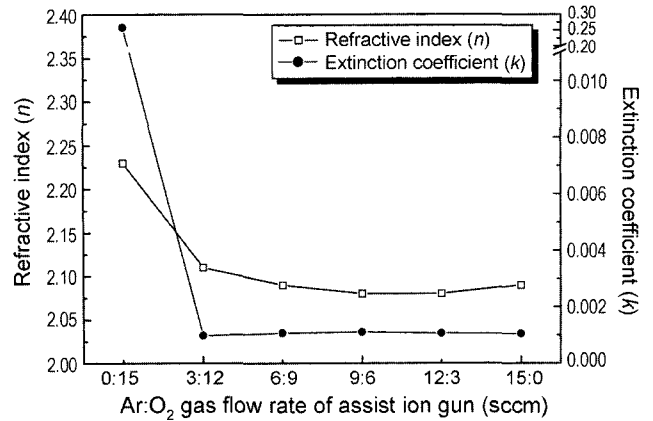


Fig. 3. Refractive index (n) and extinction coefficient (k) of Ta₂O₅ thin films as a function of Ar:O₂ gas flow rate of assist ion gun.

온총에서 발생하는 아르곤 이온이 적당한 에너지를 갖고 기관에 충돌하면 기관위에 성장하는 기둥구조의 박막을 부시거나 기관 표면 입자의 이동도를 증가시켜 조밀한 박막을 형성하게 한다. 그러나, 가속되는 Ar 이온의 에너지가 임계 에너지 이상이면 증착되는 기관에서 de-deposition 현상이 발생되어 증착되는 박막을 식각하는 현상을 야기시킨다. 이러한 de-deposition 현상에 의해 보조 이온총에서 Ar 가스량이 증가함에 따라 발생하는 Ar 이온의 양이 증가하고 이에 따라 식각되는 박막의 양이 증가하여 증착속도가 감소되는 결과로 나타내어진다.

Fig. 3은 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량에 따른 Ta₂O₅ 박막의 굴절률과 소멸계수를 1550 nm 파장에서 포락선 방법에 의해 계산된 결과이다. 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량의 비가 증가함에 따라 굴절률은 2.245에서 감소하여 Ar:O₂가 3:12~15:0인 범위에서는 약 2.09로 일정한 굴절률을 나타내었다. 소멸계수는 Ar:O₂가 0:15인 조건에서 0.27로 가장 높으며, 3:12~15:0인 범위에서는 0에 가까운 값을 나타내었다. 기관 주위의 Ar 분압이 증가하면 증착되는 물질의 기관내에서 이동도를 감소시키고 타겟에서 기관으로 향하는 Ta 이온의 mean free path를 감소시켜 조밀하지 않은 박막으로 성장하여 굴절률이 감소하는 결과를 가져온다.¹³⁾ 그러나 본 실험에서는 산소 분압의 변화에 따라 굴절률의 변화는 거의 발생되지 않았다.

Fig. 4는 Ar:O₂가 3:12인 조건에서 증착한 Ta₂O₅의 XPS 분석을 나타낸 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯이 Ta₂O₅를 나타내는 결합에너지인 Ta 4f_{7/2}가 26.751 eV로서 Ta 금속 결합에너지인 Ta4f_{7/2}(=21.6 eV)보다 큰 Ta₂O₅의 결합에너지인 Ta4f_{7/2}(=26.5 eV)에 근접하다. 따라서, 증착되는 박막은 Ta 금속 결합이 아닌 Ta-O 결합을 나타낸다. Fig. 5는 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량에 따른 Ta₂O₅ 박막의 정량 분석을 XPS 스펙트럼 곡선 면적에 의해 계산된 결과로서 보조 이온총의 Ar:O₂ 비가 0:15에서 15:0으로 아르

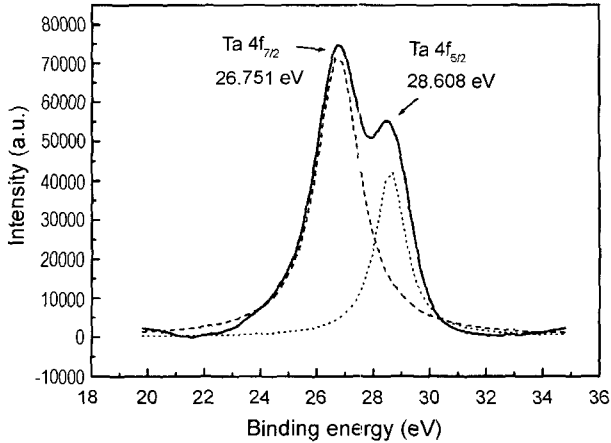


Fig. 4. XPS spectra of Ta₂O₅ thin films at the Ar:O₂ gas flow rate 3 : 12.

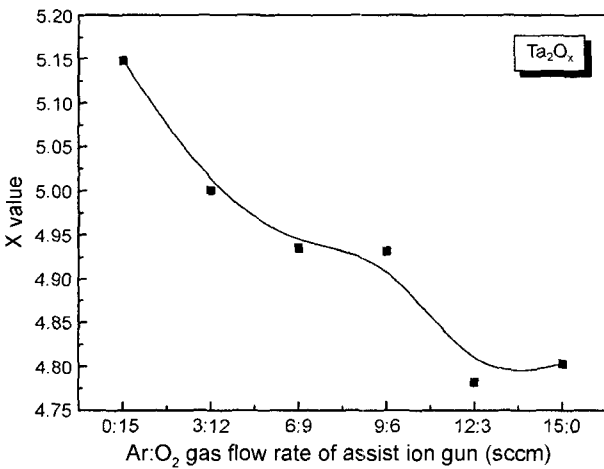


Fig. 5. The change of the stoichiometry composition for Ta₂O_x as a function of Ar:O₂ gas flow rate of assist ion gun.

곤가스의 양이 증가함에 따라 증착되는 박막의 조성이 Ta₂O_{5.15}에서 Ta₂O_{4.80}으로 산소 이온의 양이 감소하는 결과를 나타내었다. 이와 같은 결과는 기판에 박막이 증착 시에 기판 표면에 존재하는 산소 이온의 양이 Ar:O₂가 0:15인 조건에서는 과잉 상태가 되어 박막에 증착되며, Ar:O₂의 비가 3:12를 넘어서면 기판 표면에 도달하는 산소 이온의 양이 타겟에서 기판으로 향하는 Ta 이온의 양에 비하여 부족함에 따라 산소이온의 양이 부족한 Ta 산화물을 형성하는 결과를 나타내었다.

박막의 표면 거칠기는 광을 투과 또는 반사 시켜 소자로 사용시 빛의 산란을 일으켜 광손실을 야기시킨다. 또한, WDM 소자와 같이 다층박막의 증착시에는 층과 층 사이의 불균일한 두께증착을 발생시키고 더 나아가 박막의 증착시 잔류 응력을 발생시켜 박막의 분리 또는 파괴를 야기시킬 수 있다. Fig. 6은 보조 이온총의 Ar:O₂ 가스량에 따른 Ta₂O₅ 박막의 표면 거칠기를 AFM으로 분석하여 나타낸 결과이다. Ar:O₂의 비가 0:15에서 표면 거칠

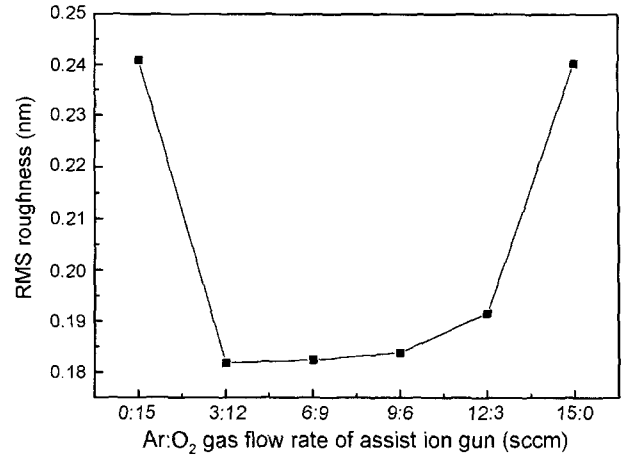


Fig. 6. Rms roughness of Ta₂O₅ thin films as a function of Ar:O₂ gas flow rate of assist ion gun.

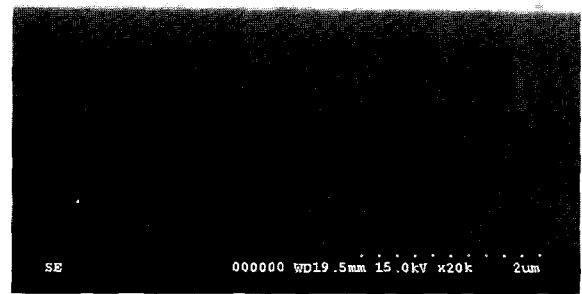


Fig. 7. The cross-section image of Ta₂O₅ films deposited at Ar:O₂=3 : 12.

기가 가장 큰 값(rms=0.243 nm)을 나타내었으며, 3:12인 조건에서 rms 값이 가장 작은 0.183 nm를 나타내었고 Ar 가스의 양이 증가함에 따라 표면 거칠기는 증가하는 경향을 나타내었다. 이와 같은 결과는 앞의 XPS 스펙트럼과 공통된 결과를 가져온다. 즉, 증착되는 박막이 화학양론적(stoichiometry) 조성으로 안정한 산화물을 형성하고 이에 따라 표면 거칠기도 가장 작은 결과를 나타내었다.

Fig. 7은 Ar:O₂가 3:12에서 증착된 Ta₂O₅ 박막의 단면을 SEM을 사용하여 분석한 사진이다. 열 증발법에 의해 형성된 박막의 경우 기둥구조를 관찰할 수 있으나 본 실험에서 사용한 이중 이온빔 스퍼터링에 의해 증착된 박막에는 기둥구조의 증착물을 발견할 수 없으며, 고밀도의 박막이 증착된 것을 확인할 수 있다.

4. 결 론

본 연구는 이중 이온빔을 사용하여 보조 이온총의 Ar:O₂

가스량을 변화하여 Ta₂O₅를 증착한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다. 보조 이온총의 O₂ 가스의 분압이 감소함에 따라 증착되는 Ta₂O₅ 박막의 성장속도는 감소하였으며, 굴절률은 O₂ 가스의 양이 3~12 sccm인 범위에서 일정한 2.09을 나타내었다. 표면 형상은 Ar:O₂ 가스 비율이 0:15를 제외하고 산소가스의 양이 감소함에 따라 표면 거칠기가 증가하는 경향을 나타내었다. Ar:O₂가 3:12인 조건에서 화학양론 조성인 Ta₂O₅를 형성하였으며, 표면 거칠기도 가장 작은 값을 나타내었다. 또한 증착된 Ta₂O₅ 박막에서는 기둥구조가 없는 고밀도의 박막이 증착되었다. 따라서, Ar:O₂가 3:12에서 Ta₂O₅ 박막을 증착하면 WDM용 위상 다층박막 제작시 고품질의 고품질률 Ta₂O₅ 박막의 제조가 가능한 것으로 생각된다.

REFERENCES

1. J. R. McNeal, A. C. Barron, S. R. Wilson, and W. C. Herrmann "Ion Assist Deposition of Optical Thin Films : Low Energy vs High Energy Bombardment," *Appl. Opt.*, **23** 552-59 (1984).
2. H. J. Cho, H. S. Lee, C. K. Hwangbo, M. H. Lee, and D. Y. Park "Optical Properties of TiO₂ Thin Films Prepared by Ion-beam Assisted Deposition," *The J. of Opt. Soc. of Kor.* **5** 9-17 (1993).
3. K. H. Guenther and H. K. Pulker, "Electron Microscopic Investigations of Cross Section of Optical Thin Films," *Appl. Opt.*, **15** 2992-98 (1976).
4. F. Flory, E. Pelletier, G. Albrand, and Y. Hu, "Surface Optical Coating by Ion Assisted Deposition Techniques : Study of Uniformity," *Appl. Opt.*, **28** 2952-57 (1989).
5. J. A. Thornton, "Influence of Apparatus Geometry and Deposition Conditions on the Structure and Topography of Thick Sputtered Coating," *J. Vac. Sci. Technol.*, **11** 666-69 (1974).
6. M. Lottiaux, "Morphology and Structure of TiO₂ Thin Layers Versus Thickness and Substrate Temperature," *Thin Solid Films*, **170** 107-26 (1989).
7. Y. Zhao, Y. Wang, H. Gong, J. Shao, and Z. Fan, "Annealing Effect on the Structure and Laser-induced Damage Threshold of Ta₂O₅/SiO₂ Dielectric Mirrors," *Appl. Surf. Sci.*, **210** 353-58 (2003).
8. Y. Fujiwara, N. Toyoda, K. Mochiji, T. Mitamura, and I. Yamada "Reduction of Surface Roughness by Ta₂O₅ Film Formation with O₂ Cluster Ion Assisted Deposition," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **206** 870-74 (2003).
9. Y. Song, T. Sakurai, K. Maruta, A. Matusita, S. Matsumoto, S. Saisho, and K. Kikuchi, "Optical and Structural Properties of Dense SiO₂, Ta₂O₅, and Nb₂O₅ Thin-films Deposited by Indirectly Reactive Sputtering Technique," *Vacuum*, **59** 755-63 (2000).
10. S. D. Cho and K. W. Paik, "Study on the Amorphous Ta₂O₅ Thin Film Capacitors Deposited by DC Magnetron Reactive Sputtering for Multichip Module Applications," *Mater. Sci. and Eng. B*, **67** 108-12 (1999).
11. H. R. Kaufman, J. J. Cuomo, and M. E. Harper, "Technology and Applications Broad-beam Ion Sources Used in Sputtering," *J. Vac. Sci. Technol.*, **21** 725-29 (1982).
12. C. K. Hwangbo, K. H. Jin, D. Y. Park, and M. H. Lee, "Determination of Optical Constants and Thickness of Weakly Absorbing Thin Films Using An Envelop Method," *J. Opt. Soc. Kor.*, **3** 1-10 (1991).
13. T. U. Ryu, D. J. Kim, S. W. Kim, and S. H. Hahn, "Optical and Mechanical Properties of Ta₂O₅ Optical Thin Films by Ion Assisted Deposition," *J. of Opt. Soc. of Kor.*, **11** 147-51 (2000).