

동심원형 대칭 전기장 집속 방식을 응용한 자가 이온 보조 소스 제작 및 Cu 박막 증착

송재훈 · 김기환 · 이충만 · 최성창 · 송종한* · 정형진 · 최원국

한국과학기술연구원, 박막기술연구센터
*한국과학기술연구원, 특성분석센터
(1998년 11월 27일 접수)

Design of Self-ion assisted beam source (SIAB) based on electron focusing with concentric symmetrical electric field and Cu thin film growth by SIAB

Jae-Hoon Song, Ki-Hwan Kim, Choong-Man Lee, Sung-Chang Choi,
Jong-Han Song*, Hyung-Jin Jung and Won-Kook Choi

*Thin Film Technology Research Center, Korea Institute of Science and Technology,
Cheongryang P.O. Box 131, Seoul 130-650, Korea*

**Advanced Analysis Center, Korea Institute of Science and Technology,
Cheongryang P.O. Box 131, Seoul 130-650, Korea*

(Received November 27, 1998)

요 약 - 자가 이온 보조 빔 (Self-Ion Assisted Beam; SIAB)를 이용해 Cu 박막을 증착한 후 박막의 특성을 조사하였다. 소스의 특성과 실험 절차를 총 전력, 이온화율, 증착 속도에 따른 이온 전류로 나타내었다. SIAB 방법으로 증착한 Cu 박막의 가속 전압의 변화에 따른 결정 구조, 불순물 농도와 비저항의 영향에 대해서 조사하였다.

Abstract - Cu thin film was deposited by a self-ion assisted beam source (SIAB) and the assessment of the Cu films was given. Some characteristics of the source and the experimental procedure are described at various conditions such as total power, ionization efficiency, and ion current vs. deposition rate. The dependence of crystalline structure, impurity concentration, and resistivity of the Cu films deposited by SIAB on acceleration voltage are discussed.

1. 서 론

고순도 박막 제조를 위하여 비교적 낮은 에너지(< 5 keV) 금속 이온을 이용하는 방법으로 이온 클러스터 빔 (Ionized Cluster Beam; ICB)[1, 2]법이나 부분 이온 분자선 적층법(Partially Ionized Molecular Beam Epitaxy; PI-MBE)[3]과 같은 여러 종류의 부분 이온 빔 소스가 개발되어 왔다. 이러한 방법들 중에서 자가 이온 충돌과 전하를 가지는 입자의 전하가 막의 결정 구조, packing density, 접착력, 표면의 거칠기에 영향을 주며 여러 기능성 박막의 질을 높일 수 있는 것으로 알려져 있다[4,

5]. 이러한 방법은 고순도의 막을 성장시킬 수 있으며 막의 조성을 쉽게 조절할 수 있고 기판의 온도가 상대적으로 낮아도 된다는 장점이 있다. 이러한 방법에서는 이온 전류 밀도가 막의 특성을 결정하는 중요한 인자 중의 하나이기 때문에 이온화율을 증가시키기 위한 많은 방법들이 보고되어 있다[6, 7].

본 실험에서는 Unvala에 의해 고안된 전자빔 집속 방식을 응용한 자가 이온보조 빔 소스(Self-Ion Assisted Beam; SIAB)를 제작 및 테스트를 하였다. 기존의 전자빔 증착법과는 달리 본 소스에는 음극으로부터 나오는 전자를 정확하게 집속시키기 위해서 자기장을 사용하는

대신에 2개의 동축형 전기장을 이용하였다. 기존의 전자 빔 증착에서는 nonthermal 에너지로 증발하는 기체와 전자와의 충돌로 양이온이 생성이 된다. 이온화된 기체의 분율은 beam 밀도와 기체의 조성에 따라 변한다. 최근 Kononenko 등[9, 10]은 이온화된 증기의 거동을 조사하기 위해 바이어스 전압을 인가하여 금속 이온 소스로서의 Unvala 전자 빔 집속 방식에 바탕을 둔 부분 이온원(Partially Ionized Beam; PIB)의 특성을 체계적으로 조사하였다. 매우 높은 thermal power가 대칭형인 동심원 형태의 전기장에 의해 물질이 증착되도록 정확하게 전자를 집속시키기 때문에 이 PIB 법으로 증착된 Cu, Al, Tb, Fe_{1-x}Co_x 박막 증착 실험 시 1~5 kV 가속 전압과 증착 속도에 따라 0.05~0.1의 이온화율을 보였다. BiSb 박막 증착의 경우 5 nm/s의 매우 빠른 증착 속도를 얻을 수 있었다. 이와 같이 하여 증착 속도, 이온화 전류, 총 전력 등에 따른 소스의 특성을 연구하였으나 가속전압에 따른 결정 구조, 불순물 농도에 대한 이온화된 입자의 영향에 대해서는 연구가 철저히 되지 않았다.

본 연구에서는 SIAB 장비를 설계 및 제작하여 실온에서 Si(100) 기판 상에 Cu 박막을 여러가지 가속 전압 하에서 증착하였다. 기본적인 소스의 특성 인자를 실험적으로 평가하기 위하여 전자 방출 전류, 이온화율, 증착 속도, 가속 전압 등을 조사하였다. 그리고 증착한 Cu 막의 특성을 가속 전압을 중점으로 분석하였다.

2. 소스 특성

소스의 특성 분석 및 Cu 박막 증착은 turbo molecular pump와 ion pump로 배기한 oil-free의 고진공 장비를 이용하여 수행하였다. 초기 진공은 약 6×10^{-8} Torr였으며 Cu 박막은 보통 $7 \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-6}$ Torr의 진공도에서 증착하였다. 소스는 250 W(5 kV, 50 mA)까지 피증착 물질에 열량 공급이 가능하며 Cu 증발을 위해 고순도 탄소 도가니를 사용하였다.

SIAB의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. SIAB 소스는 (a) 집속 전극, (b) 고리형 음극, (c) 양극 도가니, (d) 가속 기판 holder로 이루어져 있다. 정전기 모델링 프로그램을 사용하여 양극 도가니 $V_p = 2800V$ 와 가속 전압 $V_b = -500V$ 일 때의 음극에서 나오는 전자의 궤도와 이온의 궤도를 모사 실험 하였다. 지름 0.3 mm Th-coated 텅스텐을 이용한 고리형 음극은 교류를 이용해 가열하였으며, 원통형 집속 전극은 접지된 상태이다. 뜨거운

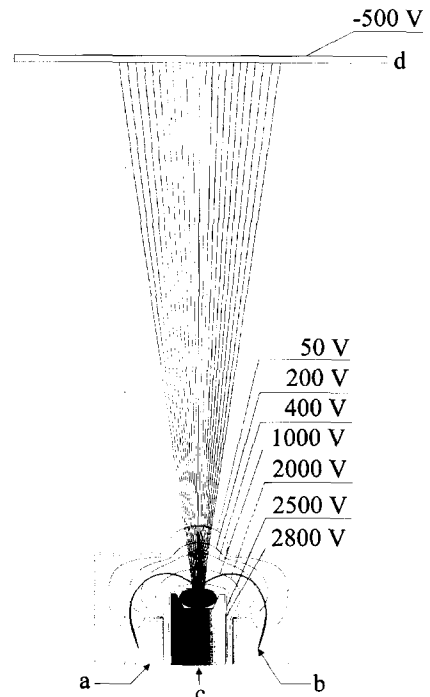


Fig. 1. 양극 도가니 (c)에 $V_p = 2,800V$ 가 인가되고, 가속 전압 (V_b)가 $-500V$ 일 때의 음극 (b)로부터 방출되는 원자의 궤적. (a)는 접지되어 있는 동축형 집속 전극이고 (d)는 가속 기판 홀더임

음극에서 방출되는 열전자는 도가니의 높은 전압 퍼텐셜에 의해 증발물의 표면에 작은 점으로 집속된다. 집속된 전자의 충돌은 Cu를 가열함과 동시에 금속 증기를 이온화시킨다. DC 고전압 전원 공급장치(Model 350, Stanford)를 이용해 ± 5 kV의 바이어스 퍼텐셜(V_b)을 인가해 이온화된 금속 이온을 기판쪽으로 가속되게 된다. 이온 전류 밀도는 기판 홀더에 장착된 패러데이 컵을 이용해 측정하였다.

전자 방출 전류(I_{cr}) 대 음극 전류(I_{cath})의 특성을 음극 퍼텐셜(V_p)의 함수로 Fig. 2에 나타내었다. I_{cath} 와 V_p 는 4~7 A까지와 1~3 kV까지 각각 변화시켰다. $I_{cath} = 4 \sim 5$ A의 경우 전자 방출 전류는 서서히 증가하였으나 I_{cath} 가 5에서 6 A까지 변하자 지수 함수적으로 증가하였다. 음극 전류가 6 A 이상에서는 모든 V_p 범위에서 전자 방출 전류의 증가율이 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 본 실험에서 전자 방출 전류는 V_p 의 증가에 따라 단순 증가하였으며 $I_{cath} = 7$ A와 $V_p = 3$ kV에서 $I_{cr} = 50$ mA을 얻을 수 있었다.

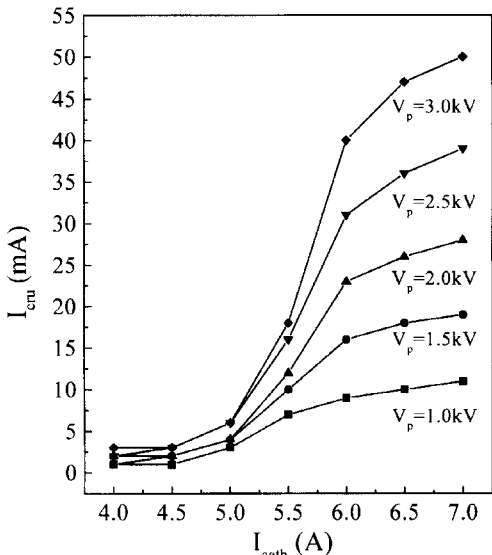


Fig. 2. V_p 가 1에서 3 kV까지 변화할 때의 I_{cru} 에 따른 I_{cath} 의 변화.

SIAB의 여러 특성 중 중요한 하나는 이온화율(η)이다. η 는 패러데이 컵을 이용해 측정된 이온 전류로부터 얻은 기판에 도달하는 Cu^+ 의 수와 증착 속도로 계산한 기판에 증착된 원자의 수의 비로 계산하였다. 이로부터 얻은 η 는 0.1~2 Å/s의 증착 속도와 $V_p=2.5\sim3.15$ kV에서 0.008~0.022였으며 Fig. 3에 나타내었다. 낮은 증착 속도에서의 η 는 높은 값을 가졌으며 일반적으로 증착 속도의 전범위에서 약 0.01의 값을 보였다. 이온화율이 1.5 Å/sec에서 최소값을 보이다가 그 이상에서 약간 증가하는 경향을 보였는데 이것은 V_p 에 따른 전자의 집속 모양이 변화하여 그 전자 전류 밀도가 변화하는 것과, anode 주위의 등전위면의 변화에 따라 구리 원자의 산란 단면적이 가속되는 전자의 에너지에 따라 변화하는 등에 기인할 것이고 또한 Cu^+ 이외의 다가 이온도 생성될 수 있기 때문에 이온화율이 변화하는 것으로 생각된다.

Fig. 4는 기판 홀더에 인가된 음의 바이어스 전압(V_b)에 대한 이온 전류의 의존성을 나타내고 있다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 이온 전류는 음 바이어스 전압의 증가에 따라 증가한다. 이온 전류 증가는 직접적으로는 단위 시간당 도달하는 이온의 개수 즉 이온의 속도(v_{ion})와 직접적으로 관련이 있다. 이온의 속도는 인가된 전압 즉 에너지의 square-root에 비례한다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 이온 전류의 증가 형태는 인가 전압에 비례하지 않고 fractional 지수 값으로 증가하는 일반적 특성 곡선 모

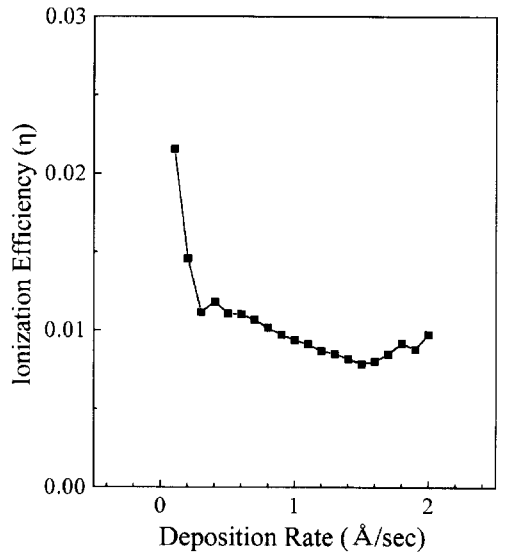


Fig. 3. 증착 속도에 따른 이온화율(η)의 변화.

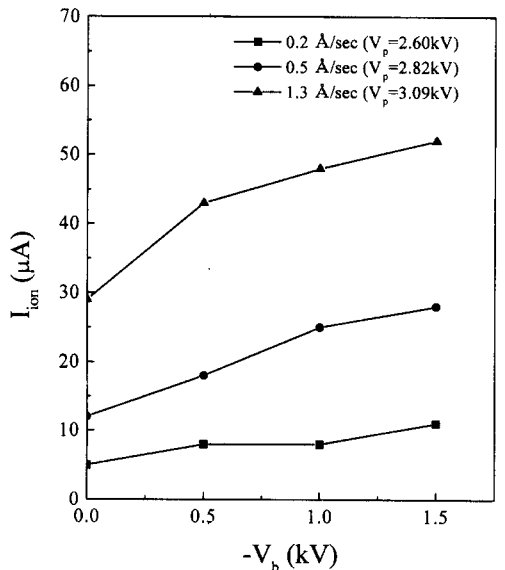


Fig. 4. $-V_b$ 의 변화에 따른 증착 속도 0.2, 0.5, 1.3 Å/s에서의 I_{ion} 의 변화.

양을 보여주고 있다.

3. SIAB으로 증착된 Cu 박막의 구조와 특성

3.1. 결정구조와 결정 크기

Si(100) 기판 상에 여러가지 가속 전압을 변화시키면서 증착한 Cu 박막의 XRD를 Fig. 5에 나타내었다. Cu

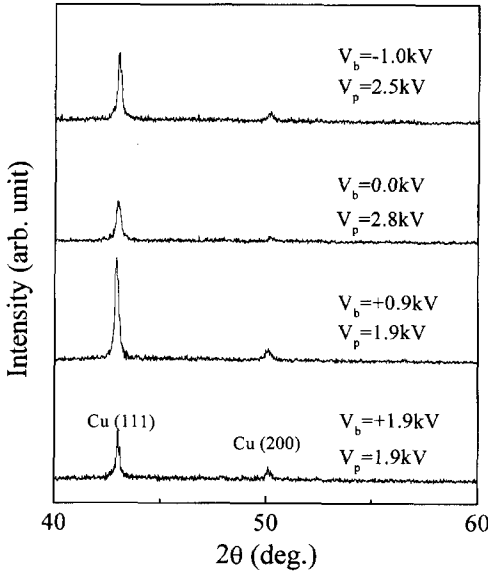


Fig. 5. SIAB로 여러 가속 전압하에서 증착한 Cu 박막의 XRD 패턴.

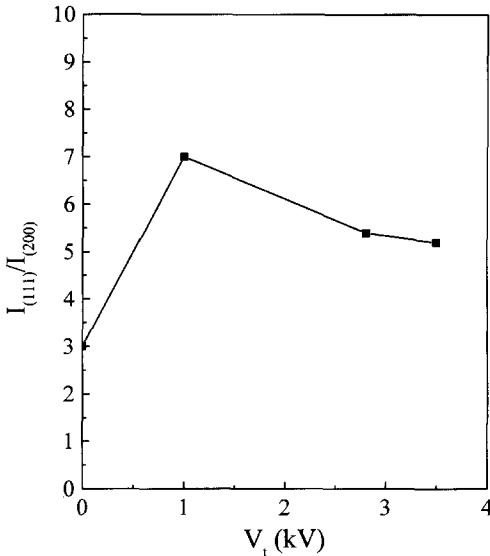


Fig. 6. XRD 패턴으로부터 얻은 $I_{(111)}/I_{(200)}$ 의 비.

박막은 전체적으로 다결정성으로(111) 방향의 우선 배향성을 가지고 성장한 것을 알 수 있었으며 그 정도는 가속 전압의 변화에 따라 변하였다. Fig. 6에 나타난 $I_{(111)}/I_{(200)}$ 세기의 비는 $V_t(=V_p-V_b)$ 가 0에서 1 kV까지 변할 때 3에서 7까지로 2배 이상 증가 하였다. 그러나 V_t 의 증가에 따라 같이 증가하는 것이 아니라 가속 전압이

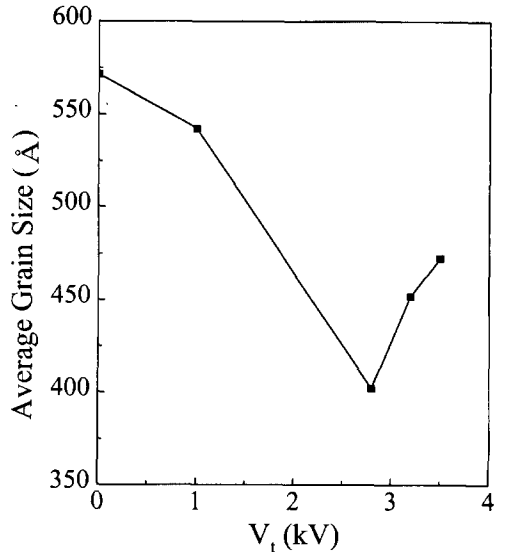


Fig. 7. Cu (111) XRD 피크로 계산한 평균 결정립 크기.

증가하면서 약간 감소하는 경향을 보였다. 이러한 결과는 가속 전압이 증가하게 되면 이온 충돌에 의한 구조적인 손상이 많이 발생한다는 것을 의미하는 것이다. 이것은 전에 보고된 부분 이온원(Partially Ionized Beam; PIB) 법으로 증착한 Al/SiO₂와 Cu/SiO₂ 박막의 경우[13, 14]에서 처럼 $I_{(111)}/I_{(200)}$ 의 값이 최대값을 보였던 결과와 잘 일치하고 있다. 증착된 Cu 박막의(111) 피크의 폭 확장으로부터 Sherrer 식[15]을 이용해서 평균 결정립 크기를 계산하였으며 V_t 의 함수로 Fig. 7에 나타내었다. $V_t=0$ V에서 증착된 Cu 막의 결정립 크기는 약 570 Å 이었다. $V_t=2.8$ kV에서는 400 Å로 급격하게 감소를 하였고 가속 전압이 증가하자 약 500 Å로 다시 증가하였으며 결정립의 감소를 AFM으로 확인을 하였으며 이를 Fig. 8에 나타내었다. 가속 전압의 증가에 따른 결정립 크기의 변화는 Bai 등[11]이 PIB로 증착한 Cu 막으로부터 얻은 결과와도 일치하고 있다. 이온충돌이 초기 단계에 핵생성을 증가시켜서 결과적으로 결정립의 크기가 작아지는 것은 잘 알려진 사실이다. 따라서 SIAB법으로 만든 Cu막의 결정립 크기가 증발된 막($V_t=0$ V)의 크기 에 비해 작은 것은 놀랄만한 사실이 아니다. 참고문헌 11에 따르면 가속 전압의 증가에 따른 결정립 크기의 증가는 고 에너지의 이온 조사에 의한 국부 가열 효과로 설명할 수 있다. 또한 표면 확산이 Cu 막의 결정립 크기를 증가시키는데 큰 역할을 할 것으로 생각되며 이는 가속 전압이 증가할 때 표면 이동이 결정립 성장을 증가시

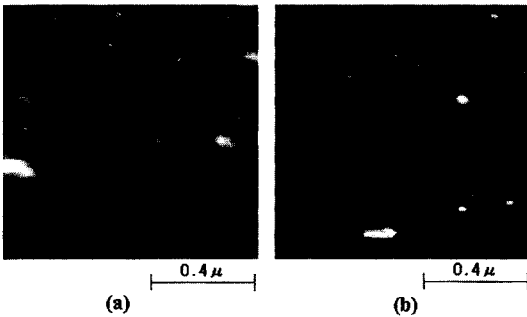


Fig. 8. $V_1=1$ kV (a)과 3.3 kV (b)일 때 증착한 Cu 박막의 AFM 이미지.

키기 때문이다.

3.2. Auger depth profile에 의한 불순물 농도

증착한 Cu 막의 불순물 농도를 Auger depth profile을 이용해 분석하였다. Fig. 9은 $V_1=1$ kV에서 증착한 막의 Auger depth profile을 보여주고 있다. Fig. 9에서 보는 바와 같이 Cu 막은 매우 완벽한 것 같지만 주 불순물로 0.2~0.5 at. % 정도의 산소가 존재하는 것을 볼 수 있었다. Cu와 다른 불순물의 보다 절대적인 양을 알기 위해서는 SIMS와 같은 정밀 분석이 필요하지만 AES depth profile에서는 탄소와 같은 다른 불순물은 나타나지 않았다. Cu 막에 있는 산소 원자는 격자 간격을 늘이는 역할을 하며 불순물로 작용을 하기 때문에 전기적 성질을

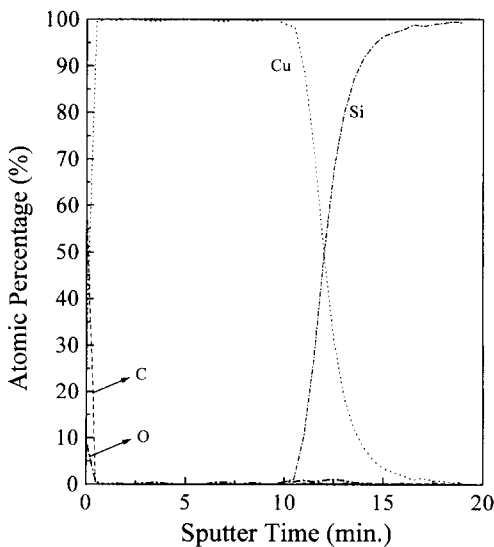


Fig. 9. $V_0=0.9$ kV 및 $V_p=1.9$ kV에서 증착한 Cu 막의 Auger depth profile.

나쁘게 해서 비저항을 증가시킨다. 일반적으로 박막 성장 동안의 이온충돌은 불순물로 들어 갈 수 있는 표면의 흡착된 기체를 효과적으로 제거하는 것으로 알려져 있다. 그러므로 이온 보조 증착은 다른 증착법에 비해서 불순물이 적은 고순도의 박막 성장에 유리하다. 그러나 때때로 불활성 이온의 혼입은 전기적 성질을 저하시키고 예상하지 못한 복잡한 결과를 얻게 된다. 그러나 SIAB법에서 자가 이온 충돌은 이러한 문제를 피할 수 있다. 그러나 막 성장 동안 불순물의 첨가는 잔류 기체에 매우 민감한 것을 무시할 수 없다. 그러므로 초기 진공도를 이온 충돌 효과를 비교하기 위해서 잘 조절을 해야 된다.

3.3. 비저항

Cu 막의 비저항은 four-point probe 법으로 얻은 면저항에 막의 두께를 곱해서 얻었으며 Fig. 10에 나타내었다. 이 때 막의 두께는 130~180 nm이었다. 이렇게 얻은 값들은 모두 bulk 비저항 값인 $1.67 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 보다 큰 값을 보였다. $V_1=2.8$ kV에서 증착한 막에서 최소값인 $2.55 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 을 얻을 수 있었다. 전기 비저항은 bulk scattering(phonon, impurity, point defect), 막 표면 그리고 결정입계로 인한 산란 등으로 발생한다. Bulk 비저항 보다 높은 것은 얇은 금속 막의 경우 예상할 수 있는 것이다. 막 표면으로부터의 전자의 확산 산란에서 Fuchs-

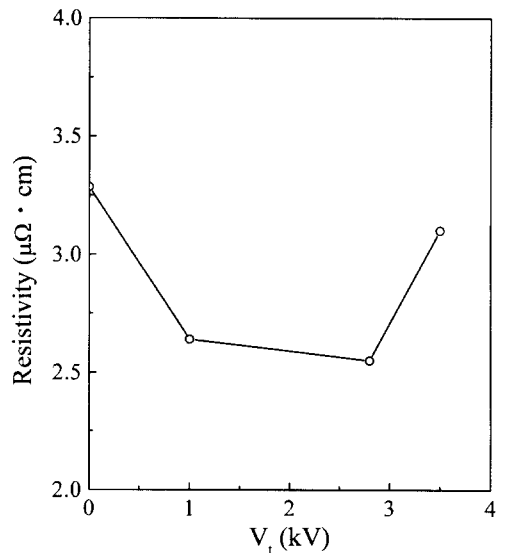


Fig. 10. 여러 가속 전압에서 SIAB 법으로 증착한 Cu 막의 비저항.

Sondheimer[14, 15]에 의해 연구된 크기 효과는 본 실험에서는 막의 두께가 2000 Å인데 반해 유효 전자의 평균 자유 경로가 수백 Å이기 때문에 무시할 수 있다. 이에 반해 결정립 크기가 전자의 평균 자유 경로와 비슷하므로 결정입계 산란의 영향이 크다. 결정입계 산란에서 평균 결정립 크기와 결정입계에서의 전자의 반사는 Mayadas와 Shatzkes[16]에 의해서 주요한 인자로 제시되었다. 이온 보조 증착법에 의해 증착된 막의 평균 결정립 크기는 증발법으로 제조한 것에 비해서 작은 것이 보통이다. 그러므로 SIAB 법으로 증착시킨 Cu 막의 비저항이 높은 것은 평균 결정립 크기의 감소로 설명할 수 있다. 본 실험에서는 Fig. 7에서 보는 바와 같이 결정립 크기가 비저항이 최소인 곳에서 높은 값을 가지지 않으므로 비저항과 평균 결정립 크기와의 관계는 발견할 수 없었다. 그러므로 비저항의 변화는 전자 반사가 더욱 주요한 것으로 생각된다. 전자의 반사는 불순물의 농도, 스트레스와 결정립 간의 불일치 등과 밀접하게 관계되어 있기 때문에 비저항에 대한 전자 산란의 영향을 명확하게 하기 위해서는 불순물 농도와 결정입계에서의 거동에 대한 좀 더 체계적인 연구가 필요하다.

4. 결 론

SIAB 소스의 특성을 조사하였으며 평가를 행하였다. 소스는 250 W (5 kV, 50 mA)까지 가능하다. 0.1~2 Å/s의 증착속도와 $V_p = 2.5\sim 3.15$ kV에서 약 0.008~0.022의 이온화율을 얻을 수 있었다. 가속 전압을 바꿈으로써 Cu $I_{(111)}/I_{(200)}$ 의 비는 3에서 7까지 변화하였다. SIAB로 증착한 Cu 막은 모두 고순도였으나 주 불순물로 0.2~0.5 at. %의 산소가 존재하였다. Cu 막의 결정립 크기는 낮은 가속 전압에서는 초기에는 감소하였으나 가속 전압이 증가하자 다시 증가하였다. 모든 막의 비저항은 bulk보다 컸으며 최소값은 약 $2.55 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 이었다. 결정립의 크기가 최소 비저항치에서 높은 값을 얻을 수 없었기 때문에 비저항과 평균 결정립 크기와의 관계는 발견

할 수 없었다. 그러므로 결정입계에서의 전자 반사는 비저항의 성질을 이해하기 위해서 철저한 미세구조 조사를 수행되어야 된다.

참고문헌

- [1] T. Takagi, *J. Vac. Sci. Technol.* **A2**, 382 (1984).
- [2] J. Wong, T.-M. Lu and S. Mehta, *J. Vac. Sci. Technol.* **B3**, 453 (1985).
- [3] T. Itoh and H. Takai, *Beam Modification of Materials Vol. 3, Ion Beam Assisted Film Growth* (Elsevier, Amsterdam, 1989), p. 223.
- [4] P. J. Martin, H. A. MacLeod, R. P. Netterfield, C. G. Pacey, and W. G. Sainty, *Appl. Opt.* **22**, 178 (1983).
- [5] J. R. McNeil, A. C. Barrons, S. R. Wilson, and W. C. Herrmann Jr., *Appl. Opt.* **24**, 486 (1984).
- [6] T. C. Nason, L. You, G.-R. Yang and T.-M. Lu, *J. Appl. Phys.* **69**, 773 (1991).
- [7] S. K. Koh, H. G. Jang, W. K. Choi, H.-J. Jung, S. G. Kondranine, and E. A. Kralkina, *Rev. Sci. Instru.* **67**, 4114 (1996).
- [8] B. A. Unvala and G. R. Booker, *Phil. Mag.* **9**, 691 (1964).
- [9] O. V. Konoenko, V. N. Matveev, A. Yu. Kasumov, N. A. Kislov and I. I. Rhodes, *Vacuum* **46**, 685 (1995).
- [10] L. K. Fionova, O. V. Kononenko and V. N. Mateev, *Thin Solid Films* **227**, 54 (1993).
- [11] P. Bai, G.-R. Yang, T.-M. Lu and L. W. M. Lau, *J. Vac. Sci. Technol.* **A8**, 1465 (1990).
- [12] S. Yapsir, L. You, T.-M. Lu and M. Madden, *J. Mat. Res.* **4**, 343 (1989).
- [13] W. Schlemminger and D. Stark, *Thin Solid Films* **137**, 49 (1986).
- [14] K. Fuchs, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* **34**, 100 (1938).
- [15] E. H. Sondheimer, *Advan. Phys.* **1**, 1 (1951).
- [16] A. F. Mayada and M. Shatzkes, *Phys. Rev.* **B1**, 1382 (1970).