

이온 보조 증착한 Ta₂O₅ 광학 박막의 광학적 및 기계적 특성 분석

류태욱 · 김동진 · 김석원 · 한성홍

울산대학교 물리학과

(2000년 2월 21일 받음, 2000년 6월 5일 수정본 받음)

전자총을 사용하여 이온 보조한 Ta₂O₅ 박막과 이온 보조하지 않은 Ta₂O₅ 박막을 진공 증착하고, 증착 조건에 따른 광학적 특성과 기계적 특성을 측정하였다. 양극전압 120 V, 이온빔 전류밀도 50~500 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 로 산소 이온 보조 증착한 박막의 경우 굴절률은 상온에서 제작한 보통 Ta₂O₅ 박막의 1.94보다 높은 2.15이였으며, 변형력은 $7.0 \times 10^8 \text{ dyne}/\text{cm}^2$ 보다 낮은 $5.0 \times 10^8 \text{ dyne}/\text{cm}^2$ 이었다. 이는 기판온도 230°C에서 증착한 박막과 광학적·기계적 특성이 유사함을 알 수 있었다. 아르곤 이온 보조한 박막의 경우 인장 변형력은 감소하였으나 가시광 영역의 단파장쪽에서 흡수가 발생하였다. 그리고 X-선 회절분석 결과 모든 박막이 비정질로 나타났다.

OCIS codes : 120.0120, 310.0310.

I. 서 론

Ta₂O₅는 높은 굴절률을 가지며 근자외선에서부터 적외선까지의 넓은 파장영역에서 투명하고 화학적, 기계적 내환경성이 뛰어나 간섭 필터, 광 도파관 등 광학 코팅에 많이 사용되고 있으며, 그밖에도 유전 상수가 약 25정도로 높아서 DRAM의 capacitor insulator, 집적 회로의 anticorrosion barrier 혹은 surface barrier에 사용되는 등 다방면으로 많이 이용되고 있고 또한 많은 연구가 진행중인 물질이다.^[1-3]

광학 박막 제조분야에서는 열 증착법을 널리 이용하고 있다. 열 증착한 박막은 기판 온도, 산소 분압 등의 증착 조건에 많은 영향을 받으며 이는 필터나 거울 등 광학 코팅에서 제작전의 설계와는 다른 결과를 가져오는 원인이 된다. 일반적으로 상온에서 증발원으로부터 열 증발한 물질은 낮은 에너지를 가지고 기판에 도달한다. 낮은 에너지로 도달한 물질은 낮은 이동도를 가지며, 이러한 증착 조건에서 성장시킨 박막은 기동 구조를 가지며 구멍이 많은 상태가 된다. 박막의 미세한 구멍은 대기중의 물을 흡수하여 박막의 광학적, 기계적 특성을 변화시키며 수명을 단축시킨다.^[4,6] 또한 박막에 존재하는 잔류 변형력은 공기, 강한 복사 또는 열적 충격에 노출되었을 때 박막의 수명을 크게 단축시키는 원인이 된다. 박막의 기계적 특성 변화는 미세구조에 의존하며, 그 미세구조 또한 증착 온도, 잔류가스 압력, 증착률, 화학 결합력, 표면이동도 등과 같은 다양한 변수들의 영향을 받는다.^[7]

이와 같은 문제점은 고 에너지를 갖는 입자를 이용한 이온 충격과 기판 가열 등의 방법으로 성장 중인 박막 입자의 이동도를 높여서 보완 혹은 해결할 수 있다. 즉 굴절률 증가, 흡수 감소, 광 산란 감소, 변형력 조절, 박막의 부착력 증대, 외부 환경에 대한 내구성 강화, 수명 연장 등 광학적, 기계적 특성의 개선이 가능하다.^[8,9] 박막이 기판에서 성장할 때 기판의 온도에 따라 막의 구조가 달라지며 이는 증착 물질의 이동

도로 설명된다. 기판을 가열할 경우 성장하는 물질의 이동도가 커지며 이는 박막에서 빈 공간을 없애고 조밀한 막으로 성장하는 결과를 가져온다.^[10] 이온 보조 증착을 할 경우 낮은 기판 온도에서 제작한 박막에서도 기판 온도를 올려서 성장시킨 것과 같은 효과를 얻을 수 있으며 이온 보조 증착법은 광학 유리는 물론 특히, 기판 온도를 올리지 못하는 플라스틱이나 반도체 기판 등의 증착에 큰 기여를 하고 있다.^[11]

따라서 본 연구에서는 전자총으로 가열하여 Ta₂O₅를 증착시켰고, end-Hall형 이온총을 사용하여 증착시 이온 보조하였다. 그리고 이온 보조한 Ta₂O₅ 박막과 이온 보조하지 않은 박막의 광학적·기계적 특성을 비교·분석하여 증착 조건이 Ta₂O₅ 박막의 광학적·기계적 특성에 미치는 영향을 연구하였다.

II. 실험 및 분석

로타리 펌프와 터보 분자펌프계로 이루어진 coating system을 사용하여 Ta₂O₅ 박막을 제작하였다. 진공 증착기의 내부 구성도는 그림 1에 나타내었다. 가열원으로 전자총과 보트가 장착되어 있으며 본 실험에서는 전자총을 사용하였다. 진공도는 피라니 게이지($100 \sim 1 \times 10^{-3} \text{ mbar}$)와 냉음극 게이지($5 \times 10^{-3} \sim 5 \times 10^{-8} \text{ mbar}$)를 사용하여 측정하였다. 이온 보조 증착을 위해 end-Hall형 이온총을 진공조 내에 장착하였다. 이온총은 빔축이 기판을 향하도록 조절하였고 기판과 20 cm를 유지시켰다. 수정 진동자 두께 모니터로 증착중인 박막의 두께를 측정하였고 기판의 온도를 측정하기 위해 K-형 열전대를 기판에 접촉시켜 사용하였으며, 기판의 가열을 위해 기판 위에 할로겐 램프를 장착하였다. 증발 물질로는 Ta₂O₅(Cerac, 99.95%)를 사용하였다. 제작한 박막의 광학적인 특성을 측정하기 위해 기판으로 슬라이드 글라스를 사용하였으며, 진공조 내에 기판을 장착하기 전에 솔벤트 세척과 탈 이온수 세척과정을 거쳐 질소 가스로 남은 액을 불어서 날렸고 증착 전에 이온빔

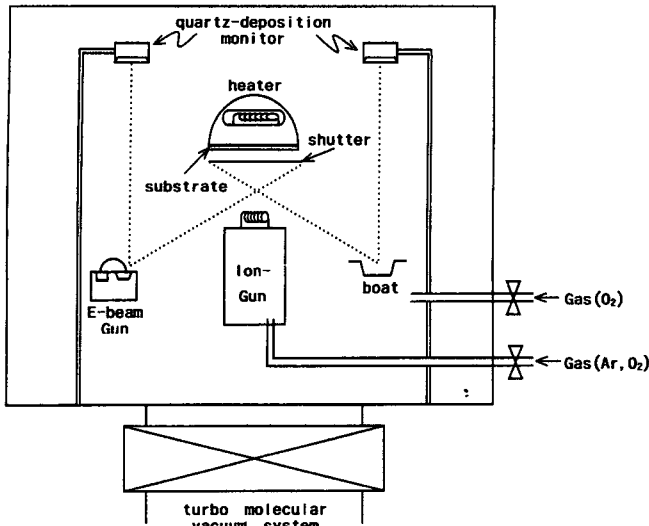


그림 1. 진공 증착기 내부 구성도.

세척을 실시하였다. 변형력 측정을 위해서는 얇은 유리기판(두께 0.12~0.17 mm)을 사용하였다. Ta₂O₅ 박막은 산소 분압 0~4×10⁻⁴ mbar와 기판온도 상온~230°C 범위에서 제작하였다. 이온빔 생성에 사용된 산소와 아르곤 가스의 최소 압력은 2×10⁻⁴ mbar 이었고 산소와 아르곤 가스를 사용하여 이온총 양극 전압 120 V, 이온빔 전류밀도 50~500 μA/cm²로 이온 보조한 박막을 제작하였다.

박막의 굴절률과 두께는 포락선 방법을^[12,13] 이용하여 계산하였다. 수직방향의 투과율은 분광광도계를 사용하여 파장 190~1100 nm 영역에서 측정하였다. 박막이 균질하다고 가정하고 측정한 투과율 그래프로부터 극대값과 극소값을 Cauchy 분산식으로 곡선 맞춤하여 각 극값을 연결한 후, 투과율 그래프를 둘러싸는 포락선을 구하여 파장에 대한 굴절률 n(λ)을 계산하였다.

$$n(\lambda) = \sqrt{S + \sqrt{S^2 - n(\lambda)_0^2 n(\lambda)_s^2}} \quad (1)$$

$$S = \frac{1}{2}(n(\lambda)_0^2 + n(\lambda)_s^2) + 2n_0 n_s \frac{T(\lambda)_{\max} - T(\lambda)_{\min}}{T(\lambda)_{\max} \times T(\lambda)_{\min}} \quad (2)$$

여기서 n₀는 공기의 굴절률, n_s는 박막의 굴절률, T_{max}는 최대값을 잇는 포락선, T_{min}는 최소값을 잇는 포락선이다. 박막의 두께는 이론 투과율을 계산하여 측정한 투과율과 비교해서 결정하였다. 임의의 초기 최대 최소 박막 두께와 변동폭을 주고 포락선 방법으로 계산된 굴절률을 이용하여 이론 투과율을 계산하였으며, 계산값과 측정값을 비교하여 편차를 계산하였다. 편차가 최소가 되는 두께를 기준으로 다시 최대 최소 두께를 결정하고, 두께 변동폭을 낮추어 다시 이론 투과율 계산부터 동일한 과정을 반복하였으며 편차가 최소가 될 때의 박막의 두께 d_f를 결정하였다.

제작한 박막의 변형력은 cantilever beam 측정법을 이용하여 측정하였다. 변형력이 모든 방향으로 균일하며 기판과 박막이

균질하다고 가정하면 박막의 변형력 σ_f는 Stoney 공식으로 계산이 가능하다.^[7]

$$\sigma_f = \frac{1}{6R} \frac{E_s d_s^2}{(1 - \nu_s) d_f} \quad (3)$$

여기서 E_s는 기판의 영률이고, ν_s는 기판의 Poisson비, d_s는 기판의 두께, d_f는 박막의 두께 그리고 R은 시료의 곡률 반경이다. 기판의 영률은 6.5×10⁵ kg/cm²을 Poisson비는 0.25를 사용하였다. 기판의 두께는 마이크로미터를 이용하여 측정하였으며 박막의 두께는 앞에서 포락선 방법으로 결정한 값을 사용하였다. 그리고 시료의 곡률 반경은 한쪽 끝단이 고정된 시료의 맞은편 끝단에서 반사된 레이저 빔이 편향되는 각을 측정하여 계산하였다.

III. 결과 및 논의

3.1. 산소 분압의 효과

그림 2는 기판을 가열하지 않은 상온에서 산소 분압을 변화시켜 제작한 박막의 굴절률 변화를 나타낸 그림이다. Ta₂O₅를 증발 시작 물질로 사용한 본 실험에서는 산소를 전혀 주입하지 않은 상태에서도 박막의 흡수는 발생하지 않았으며 산소를 주입하지 않았을 때 가장 높은 굴절률 값 2.04의 값을 가졌고 산소 분압이 증가함에 따라 굴절률이 감소하여 4×10⁻⁴ mbar에서 1.94의 낮은 굴절률 값을 가졌다.

H. Demiryont 등에 의하면 증발 시작 물질로 Ta₂O₅를 사용하지 않은 경우 산소 분압 조건은 Ta₂O₅ 박막의 광학적 특성에 큰 변화를 가져온다. 적정 산소 분압에 도달하지 않은 경우 가시광 영역에서 단파장 쪽의 흡수가 커지며 이는 산소의 양이 부족하여 화학적 조성이 다른 TaO_x 박막으로 성장하기 때문이다.^[14] 이러한 사실과 본 실험의 산소를 주입하지 않고 제작한 박막에서 흡수가 나타나지 않음을 볼 때 본 실험에서 증착한 박막은 화학적 조성이 다른 TaO_x 박막으로 성장하지 않았으며 따라서 화학적 조성이 증발 시작 물질과 동일한 Ta₂O₅ 박막으로 성장하였음을 추측할 수 있다. 또한 그림 2에서 산소 분압이 높을수록 굴절률이 낮아지는 경향을

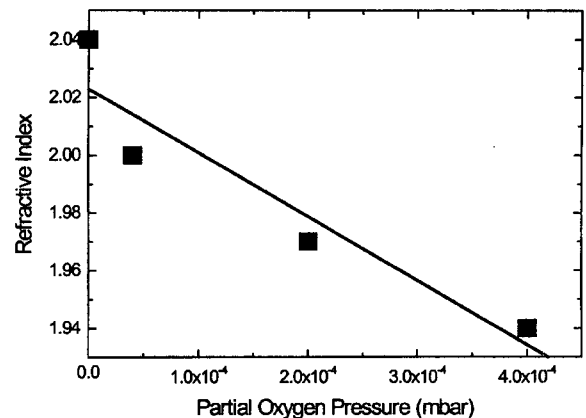


그림 2. 산소 분압의 변화에 따른 Ta₂O₅ 박막의 550 nm 파장에서 굴절률 변화.

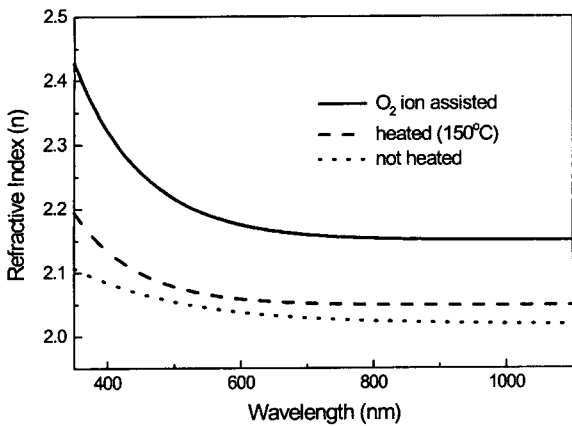


그림 5. Ta₂O₅ 박막의 굴절률 분산 그래프.

은 보조 증착한 박막에서는 굴절률의 변화와 함께 변형력의 변화도 같이 나타났다. 표 1에 산소 이온 보조와 아르곤 이온 보조한 박막의 이온 보조 조건에 따른 변형력과 굴절률을 그리고 보통 박막의 기판온도에 따른 변형력과 굴절률을 나타내었다. 이때 걸어준 양극전압은 동일한 120 V이다. 같은 이온을 사용하였을 때 이온빔 전류밀도의 변화는 변형력에 큰 영향을 미치지 않았다. 그러나 서로 다른 이온을 사용한 경우 즉, 산소 이온 보조한 경우와 아르곤 이온 보조한 경우를 서로 비교해보면 변형력의 뚜렷한 차이가 나타난다. 아르곤 이온보조 증착한 박막의 경우 인장 변형력이 산소 이온 보조 증착한 경우의 1/2배 정도로 변형력이 감소함을 확인할 수 있으며 이는 질량과 크기가 큰 아르곤 이온으로 충돌할 경우 산소 이온으로 충돌한 경우보다 변형력을 변화시키는데는 더 효과적임을 알 수 있다.

걸어준 양극전압 120 V, 이온빔 전류밀도 50 μA/cm²에서 산소 이온 보조 증착한 박막과 기판 온도를 230°C로 올려서 증착한 박막은 유사한 광학적·기계적 특성을 가졌다. 산소 이온 보조 증착한 박막의 굴절률은 550 nm 파장에서 230°C로 올려서 증착한 박막과 동일한 2.15의 값을 가졌으며 변형력은 기판을 가열하였을 때 보다 산소 이온 보조 증착하였을 때 약 30% 감소된 5.0×10⁸ dyne/cm²의 값을 가졌다. 동일한 굴절률을 가지는 Ta₂O₅ 박막에서 기판을 가열하였을 때와 산소 이온 보조 증착을 하였을 때 나타나는 변형력의 차이를 볼 때 산소 이온 보조 증착에서 연쇄 충돌로 인한 밀도 증가와 함께 국소적인 thermal spike 효과^[15]가 복합적으로 나타났음을 알 수 있다.

증착 후 박막이 갖는 변형력은 증착 조건에 따른 물리적·화학적 변화에 기인한다. 각 증착 조건에서 물리적 상과 화학적 조성의 변화 여부를 관찰하기 위해 X-선 회절 분석을 하였다. 분석 결과 모든 박막들은 비정질로 나타났으며 Ta₂O₅ 박막의 광학적·기계적 특성 변화는 물리적 상변화의 원인이 아님을 알 수 있었다. Ta₂O₅의 결정성은 온도 650°C 이상에서 나타나며 스퍼터링 등 고에너지의 증착법으로 제작한 박막은 조밀도가 증가되며 압축응력을 가지는 것으로 알려져 있다.^[16,17] 본 실험에서 기판 가열은 230°C 미만으로 낮았으며 120 V의

전압과 낮은 이온빔 전류밀도를 사용한 산소와 아르곤 보조 증착을 통해서 굴절률과 변형력의 변화는 관찰되었으나 650°C의 높은 온도 효과는 나타나지 않았다.

IV. 결 론

상온에서 이온 보조하지 않고 증착한 보통 박막의 경우 산소를 주입하지 않아도 흡수가 발생하지 않았다. 이를 통해 증착된 박막은 화학적 조성이 증발 시작 물질과 동일한 Ta₂O₅로 성장하였음을 알 수 있었다. 높은 산소 분압은 오히려 굴절률을 낮추는 결과를 가져왔다. 증착 중 기판 온도는 굴절률에 큰 영향을 미쳤으며 기판 온도를 증가시킬수록 굴절률이 높아져서 벌크에 접근해감을 확인하였다. 기판온도 상온~230°C 범위에서 박막의 굴절률은 1.94~2.15이었다. 산소 이온 보조 증착한 결과 굴절률이 높아졌으며 걸어준 양극전압 120 V, 이온빔 전류밀도 50 μA/cm에서 제작한 시료와 기판 온도를 230°C로 올려서 제작한 시료는 거의 같은 광학적 특성을 가졌다. 그러나 이온 보조 증착한 박막의 변형력은 이온 보조하지 않은 박막에 비해 감소하였고 이를 통해 연쇄 충돌과 국부적 thermal spike 효과가 복합적으로 발생하여 광학적·기계적 특성 변화의 주된 원인으로 작용함을 예측할 수 있었다. 동일한 조건에서 아르곤 이온 보조 증착한 박막에서는 가시광 영역의 자외선쪽에서 흡수가 발생하였고 시료의 잔류 변형력은 산소 이온 보조 증착한 박막보다 더 낮은 값을 가짐을 확인할 수 있었다.

본 연구를 통해 낮은 전압의 산소 이온 보조 증착으로 기판 온도를 230°C로 가열한 것과 동일한 광학적 특성을 가지며 잔류 변형력이 작은 Ta₂O₅ 박막의 제작이 가능함을 확인할 수 있었고, 이 결과는 낮은 전압의 산소 이온 보조 증착을 통해 기판을 가열할 수 있는 유리 등의 기판은 물론 기판을 가열할 경우 문제가 발생하는 플라스틱이나 반도체 기판 등의 이용에서 기판을 가열하지 않고 벌크 물질에 가까운 굴절률과 잔류 변형력이 작은 Ta₂O₅ 박막의 제작에 응용이 가능할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 1998학년도 핵심전문연구과제 연구비(981-0206-021-2)의 지원을 받아 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] W. H. Cheng, S. F. Chi, and A. K. Chu, *Thin Solid Films* **347**, 233 (1999).
- [2] E. Atanassova, and D. Spassov, *Appl. Surf. Sci.* **135**, 71 (1998).
- [3] F. Flory, D. Berthier, H. Rigneault, and L. Roux, *Appl. Opt.* **35**, 5085 (1996).
- [4] 김형근, 반승일, 김석원, 한성홍, *한국광학회지* **8**, 37 (1997).
- [5] F. López and E. Bernabéu, *Thin Solid Films* **191**, 13 (1990).
- [6] E. Ritter, *Appl. Opt.* **20**, 21 (1981).

- [7] Milton Ohring, The materials science of thin films, (Academic Press, New York, 1992), pp. 403-450.
- [8] M. L. Fulton, SPIE, **2253**, 374 (1994).
- [9] 조현주, 이홍순, 황보창권, 이민희, 박대윤, 한국광학회지 **5**, 9 (1994).
- [10] Milton Ohring, The materials science of thin films, (Academic Press, New York, 1992), pp. 195-247.
- [11] P. J. Martin, W. G. Sainty, R. P. Netterfield, D. R. McKenzie, D. J. H. Cockayne, S. H. Sie, O. R. Wood and H. G. Craighead, Appl. Opt. **26**, 1235 (1987).
- [12] J. C. Manificier, J. Gasiot and J. P. Fillard, J. Phys. E **9**, 1002 (1976).
- [13] 황보창권, 진권희, 박대윤, 이민희, 한국광학회지 **3**, 1 (1992).
- [14] H. Demiryont, James R. Sites, and Kent Geib, Appl. Opt. **24**, 490 (1985).
- [15] Jeorme J. Cuomo, Stephen M. Rossnagel, and Jarold R. Kaufman, Handbook of ion beam processing technology, (Noyes Publications, Park Ridge 1989), pp. 247-249.
- [16] J. V. Grahn P.-E. Hellberg and E. Olsson, J. Appl. Phys. **84**, 1632 (1998).
- [17] M. Cevro, Thin Solid Films **258**, 91 (1995).

Optical and mechanical properties of Ta₂O₅ optical thin films by ion assisted deposition

Tae Uk Ryu, Dong Jin Kim, Sok Won Kim, and Sung-Hong Hahn

Department of Physics, University of Ulsan, Ulsan 680-749, Korea

(Received February 21, 2000, Revised manuscript received June 5, 2000)

We deposited the ion assisted Ta₂O₅ films and conventional thermal evaporated Ta₂O₅ films by using electron beam gun, and measured the optical properties and mechanical properties of the fabricated films according to the evaporation conditions. In the case of the Ta₂O₅ films by oxygen ion assisted deposition with the anode voltage of 120 V, and current density of 50~500 μA/cm², the refractive index exhibited 2.15 which was higher than the conventionally deposited film index 1.94 and the tensile stress exhibited 5.0×10⁸ dyne/cm² which was lower than 7.0×10⁸ dyne/cm². This properties coincided with the optical and mechanical properties of the films deposited at the elevated substrate temperature of 230°C. In the case of the argon ion assisted films the tensile stress was decreased but the absorption existed at the short wavelength in the visible spectral region. And all the fabricated films were found to be amorphous by the X-ray diffraction analysis.

OCIS codes : 120.0120, 310.0310.