

비대칭 펄스 직류 반응성 스퍼터링으로 증착된 AlN 박막의 성장 거동

김주형* · 이진국* · 안진호**
*한국과학기술연구원 박막기술연구센터
**한양대학교 재료공학과
(2000년 11월 6일 접수)

Growing Behavior of AlN Thin Film Deposited by Asymmetric Bipolar Pulsed DC Reactive Sputtering

Ju-Hyung Kim*, Jeon-Kook Lee* and Jin-Ho Ahn**

*Thin Film Technology Research Center, KIST, Seoul, 136-791, Korea

**Department of Material Science and Engineering, Hanyang University, Seoul, 133-791, Korea

(Received November 6, 2000)

초 록

비대칭 펄스 직류 반응성 스퍼터링을 이용하여 상온에서 Si(100) 기판 위에 AlN 박막을 증착하였다. 100 kHz에서 200 kHz 까지 펄스 주파수의 변화 및 70%에서 90%까지 duty cycle의 변화에 따른 아크 발생과 AlN 박막의 결정성 그리고 미세 조직을 관찰하였다. Duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 증착 중에 아크 발생 빈도가 현저히 감소하였고 AlN 박막의 입자 크기와 결정상의 c축 배향성이 증가하였다. 반면에 펄스 주파수 변화에 따른 아크 발생은 일정한 경향을 나타내지 않았지만 전반적으로 많은 아크가 발생했다. 아크 발생 빈도가 늘어남에 따라 c축 배향성이 감소하였다. 양의 펄스 유지 시간과 펄스 주파수가 감소함에 따라 박막의 증착 속도는 증가하였으며 440 Å/min의 높은 증착 속도를 나타냈다.

ABSTRACT

AlN thin films were deposited on Si(100) substrates at room temperature using asymmetric bipolar pulsed dc reactive sputtering. We observed arc generation and crystallinity, microstructure of AlN thin films with change of duty cycle and pulsing frequency. With increase of positive pulse duration time, arc generation count during deposition was markedly reduced and grain size was increased and c axis oriented growth of AlN thin films was improved. With increase of pulsing frequency, however, the tendency of arc generation was irregular and many arc was generated overall. c axis oriented growth of AlN thin films was degraded by the increase of arc generation. Deposition rate was increased with decrease of positive pulse duration time and pulsing frequency. The highest deposition rate was 440 Å/min.

Key words : AlN, Pulsed dc, Arc, Duty cycle, Pulse frequency

1. 서 론

AlN은 알루미늄과 질소 원자가 공유결합을 한 육방정의 wurtzite 결정구조를 가지고 있다.¹⁾ AlN은 열적, 화학적으로 안정하며 높은 열전도도와 높은 비저항 그리고 넓은 band gap을 가져 반도체 소자의 방열 및 절연 재료 그리고 광전 소자의 응용에 많은 연구가 이루어지고 있다.¹⁾ 또한 AlN은 c축 압전성이 크고 음파 전달 속도가 매우 크며 acoustic loss가 작아 고주파 소자의 압전층에 이용될 재료로서 주목받고 있다.²⁾

AlN 박막의 증착은 CVD(chemical vapor deposition), MBE(molecular beam epitaxy) 그리고 반응성 스퍼터링 등에 의해 이루어질 수 있다.^{3,4)} 그러나 CVD나 MBE 방법에서

는 박막 증착 시에 높은 기판 온도가 필요하기 때문에 실제 소자 공정에서 적용되기 어렵다. 지금까지 AlN 박막은 주로 반응성 스퍼터링에 의해 증착되어 오고 있다. 반응성 스퍼터링은 진공 챔버 내에 반응성 기체를 유입하여 스퍼터된 전도성 타겟 물질과 반응성 기체의 화합물을 기판 위에 증착 시키는 방법이다.

이 방법은 타겟에 가해지는 전원에 따라 DC 반응성 스퍼터링과 RF 반응성 스퍼터링으로 나누어진다. DC 반응성 스퍼터링의 경우, 진공 챔버 내에 유입된 반응성 기체가 타겟 표면과 반응하거나 스퍼터링 과정에서 생성된 화합물이 타겟 표면 위에 증착되어 Fig. 1(a)처럼 전도성 타겟 표면에 국부적으로 절연막을 형성하게 된다. 타겟에 가해진 음의 전압에 의해 절연막의 표면은 양이온으로 충전되고 전압

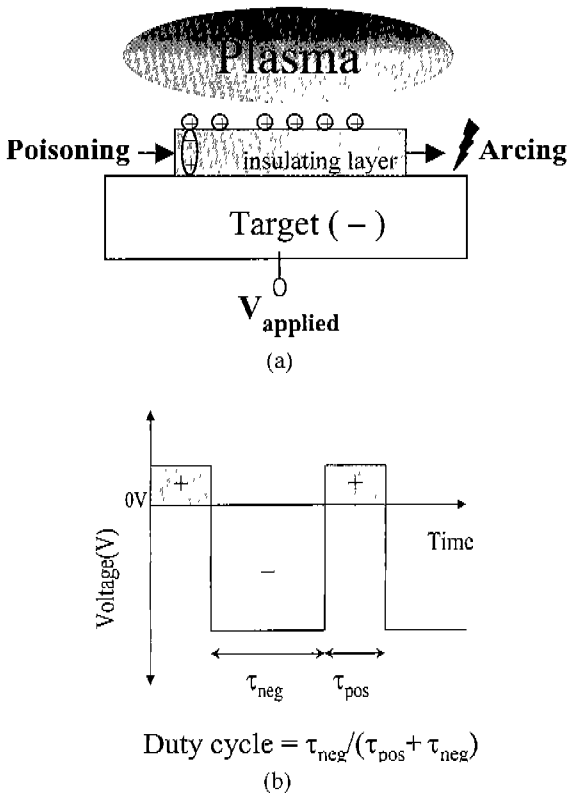


Fig. 1. Schematic representation of (a) arc generation by target poisoning (b) duty cycle of asymmetric bipolar pulse.

이 증가하면 절연막에서 절연과피가 발생한다. 이 때 순간적으로 전류가 증가하며 아킹이 발생한다.⁵⁾ Fig. 1(a)에 타겟 오염으로 인한 아킹의 발생을 도식적으로 나타내었다. 아킹은 타겟 표면으로부터 미립자를 발생시키고 그로 인해 증착 되고 있는 박막 내에 결함이 형성될 수 있다. 또한 타겟 표면에서 아킹에 의해 손상된 지역은 연속적인 아크 발생의 근원지로서 작용할 수 있다. 이러한 아킹은 안정한 공정을 이루기 어렵게 하며 전력 공급기에 손상을 줄 수도 있을 뿐만 아니라 증착되는 박막의 구조적, 조성적 특성에 영향을 미칠 수 있다.⁵⁾

RF 반응성 스퍼터링의 경우에는 양질의 박막을 제조할 수 있지만 RF 전력의 본질적인 특성 때문에 증착 속도가 매우 느리다. 이런 단점들을 개선하기 위해 최근에 펄스 직류 전력을 이용한 스퍼터링 방법들이 시도되어지고 있고 빠른 증착 속도와 거의 결함이 없는 박막의 제조가 이미 보고되었다.^{6,7)} 특히, 비대칭 양극성 펄스 직류 반응성 스퍼터링 방법이 제안되어 지고 있다. 비대칭 양극성 펄스 직류 반응성 스퍼터링 방법은 반응성 기체의 유입 또는 스퍼터링 중에 타겟 표면에 형성된 절연막의 절연과피를 막기 위해 타겟에 펄스를 인가할 때 양의 펄스를 첨가하여 음의 펄스에 의해 충전된 절연막의 표면을 방전시켜 아크의 발생을 억제한다. 또한 타겟에 비대칭 양극성 펄스를 인가함으로써 타겟 표면에

형성된 절연막이 제거되어 아크 발생을 방지할 수 있다.⁵⁾

Fig. 1(b)에 비대칭 양극성 펄스의 duty cycle을 나타내었다. Duty cycle은 양의 펄스 및 음의 펄스 유지 시간의 합에 대한 음의 펄스 유지 시간의 비로 정의되어진다. 비대칭 양극성 펄스 직류 반응성 스퍼터링 방법은 타겟에 인가되는 펄스의 형태를 조절함에 의해서 공정 및 증착 되는 박막의 특성을 조절할 수 있다. 즉, duty cycle과 펄스 주파수를 조절하여 아크가 발생하지 않는 안정한 공정을 이룰 수 있고 그와 동시에 빠른 증착 속도를 갖는 양질의 박막을 제조할 수 있는 방법이다. 그러나 아직까지 펄스 직류 공정을 이용한 AlN 박막의 제조에 관한 연구는 보고된 바 없다. 본 연구에서는 펄스 직류 반응성 스퍼터링 방법을 이용하여 AlN 박막을 제조하였으며 duty cycle과 펄스 주파수의 변화가 AlN 박막의 성장에 미치는 결과에 대해 고찰하였다.

2. 실험방법

펄스 직류 전원을 이용하여 반응성 스퍼터링 법으로 Si(100) 기판 위에 AlN 박막을 상온에서 증착 하였다. 펄스 직류 전원으로는 ENI사의 Reactive Plasma Generator (RPG) 50을 사용하였다. Table 1에 AlN 박막의 증착 조건을 나타내었다.

박막의 결정구조를 분석하기 위하여 Phillips사의 X-Ray Diffractometer(XRD)를 사용하였고, 미세 조직과 박막의 두께를 관찰하기 위해 Field Emission Scanning Electron Microscopy(FESEM)를 사용하였다. 박막의 표면 거칠기는 Park Scientific Instrument사의 Auto probe M5 Atomic Force Microscopy(AFM)를 사용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Duty cycle 변화에 따른 AlN 박막의 성장 거동

Fig. 2에는 주파수가 100 kHz인 펄스의 70%에서 90%가

Table 1. Deposition Condition of AlN Thin Films by Asymmetric Bipolar Pulsed dc Reactive Sputtering

Parameters	Conditions
Base pressure	$\leq 3.0 \times 10^{-6}$ torr
Working pressure	3.5 mtorr
The ratio of Ar to N ₂ (Ar/N ₂)	9/1
Pulsed dc power	200 W
Duty cycle	70~90% duty
Pulse frequency	100~200 kHz
Distance between target and substrate	6 cm
Pre-sputtering time	30 min
Substrate temperature	Room temperature

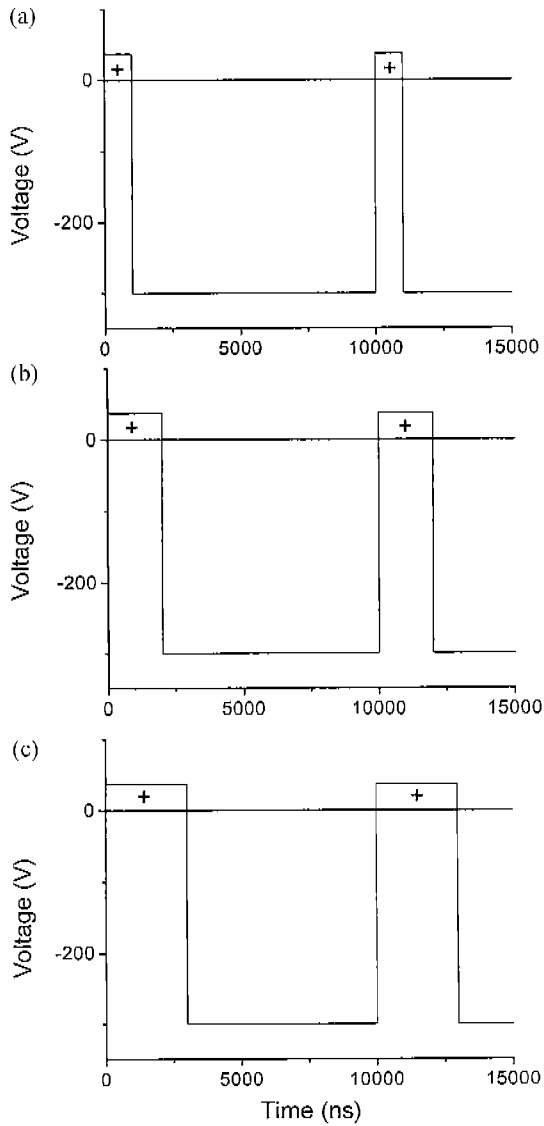


Fig. 2. Asymmetric bipolar pulse at 100kHz with different duty cycles; (a) 90% duty (b) 80% duty (c) 70% duty.

지의 duty cycle을 나타내었다. Duty cycle이 70%에서 90%까지 변화함에 따라 음의 펄스 유지 시간이 증가하는 것을 알 수 있다. Fig. 3에는 주파수가 100 kHz인 펄스의 70%에서 90%까지의 duty cycle 변화에 따른 플라즈마의 방전 전압 및 증착 속도와 증착 중에 발생한 아크 수를 나타내었다. Duty cycle이 70%에서 90%까지 변화함에 따라 음의 펄스 유지 시간이 증가하기 때문에 음의 플라즈마 방전 전압의 크기가 증가하였다. 플라즈마 방전 전압의 크기가 커지면 타겟에 대한 이온의 에너지가 커져 결국 스퍼터링을 증가시키므로 박막의 증착 속도는 증가되었다. 증착 중에 발생한 아크 수는 duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가할수록 현저히 감소하는 것을 볼 수 있다. Duty cycle이 90%에서 70%까지 변화함에 따라 상대적으로 양의

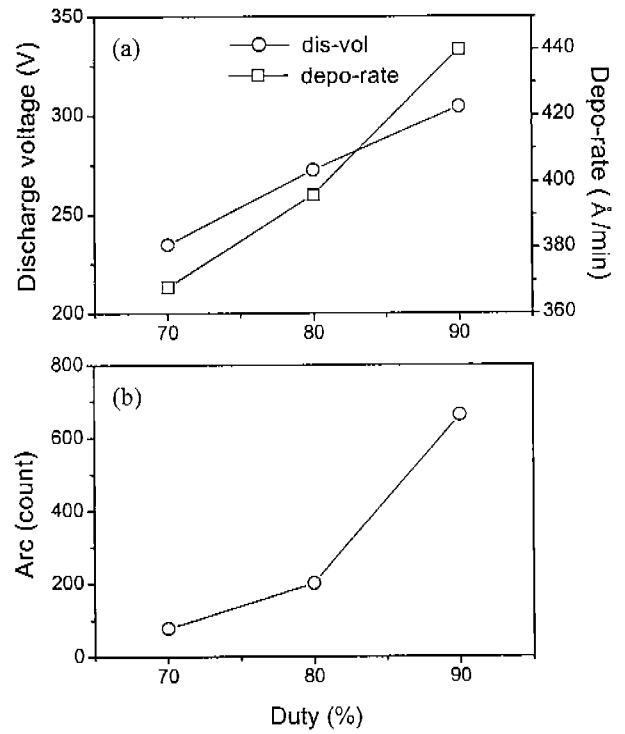


Fig. 3. Pulsed dc process properties at 100 kHz with different duty cycle; (a) discharge voltage and deposition rate (b) arc count.

펄스 유지 시간은 커지고 음의 펄스 유지 시간은 작아진다. 따라서 타겟 표면에 국부적으로 형성된 절연층의 표면에서는 증가된 양의 펄스 유지 시간으로 인해 충분한 방전이 일어나고 또한 감소된 음의 펄스 시간으로 절연층 내에서 절연과괴 전계에 이르게 되지 않아 아크의 발생 수는 감소한다.^{8,9)}

Fig. 4에는 주파수가 100 kHz인 펄스의 70%에서 90%까지의 duty cycle 변화에 따른 AlN 박막의 미세 조직을 나타내었다. 증착된 AlN 박막은 각 조건에서 모두 표면 입자의 모양이 낱알 형태로 이루어진 균일하며 치밀한 주상조직을 가졌다. Duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 입자 크기가 증가하였다. 증착되는 박막의 성장은 기관 표면에서 원자 이동에 의해 이루어진다. 이러한 원자의 표면 이동도는 상온 증착 시에는 기관에 도달하는 스퍼터된 입자들의 에너지에 의존하게 된다. 또한 기관 위에서 원자가 에너지적으로 안정한 자리로 이동하는 데에는 시간이 요구되므로 낮은 증착 속도에서 입자 성장이 촉진된다.¹⁰⁾ Fig. 3(a)의 플라즈마 방전전압과 증착 속도를 고려하면 duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 기관에 도달하는 스퍼터된 입자들의 에너지 증가와 증착 속도의 감소에 따른 원자 이동시간의 증가로 입자 크기가 증가된 것으로 판단된다.

Fig. 5에는 주파수가 100 kHz인 펄스의 70%에서 90%까지

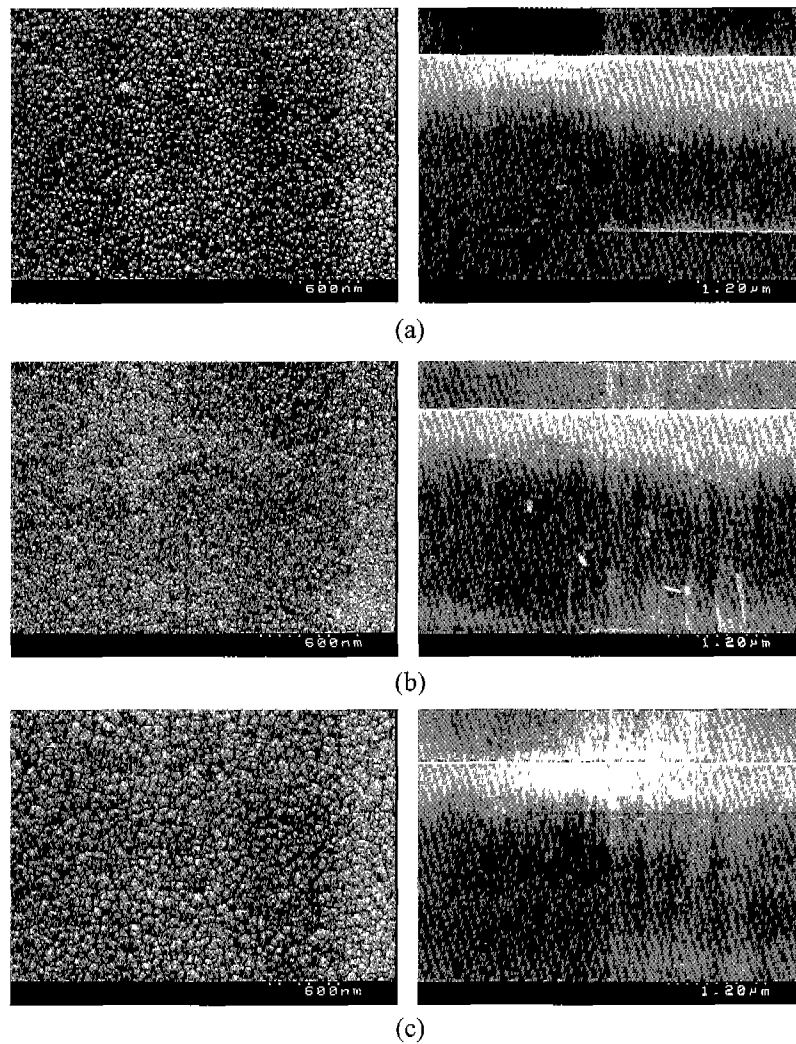


Fig. 4. SEM micrographs of AlN thin films deposited by pulsed dc reactive sputtering at 100kHz with different duty cycle; (a) 90% duty (b) 80% duty (c) 70% duty.

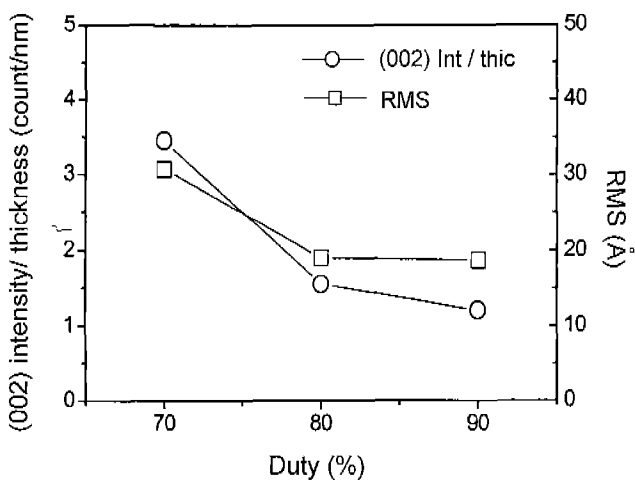


Fig. 5. Normalized (002) intensity and RMS value of AlN thin films by asymmetric bipolar pulsed dc reactive sputtering at 100 kHz with different duty cycle.

지의 duty cycle 변화에 따른 AlN 박막의 c축 배향성과 표면 거칠기를 나타내었다. 단위 두께에 대한 (002)피크 강도로 c축 배향성을 나타내었고, RMS 값으로 표면 거칠기를 표현하였다. c축 배향성과 RMS 값은 duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 증가하였다. Fig. 3의 duty cycle 변화에 따른 플라즈마 방전전압, 증착 속도, 아크 발생 그리고 Fig. 4의 미세 조직을 고려하면 duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간 증가에 따른 원자의 표면 이동도 증가 및 증착 속도와 아크 발생의 감소로 인해 박막의 입자 성장 및 결정성이 향상된 것으로 사료된다. 그리고 낱알 형태를 갖는 입자의 크기 증가는 표면의 굴곡을 크게 만들어 표면 거칠기를 증가시킨 것으로 판단된다.

3.2. 펄스 주파수 변화에 따른 AlN 박막의 성장 거동

Fig. 6에는 90% duty cycle을 갖는 펄스를 100 kHz에서 200 kHz까지 주파수 변화에 따라 나타내었다. Fig. 7에는

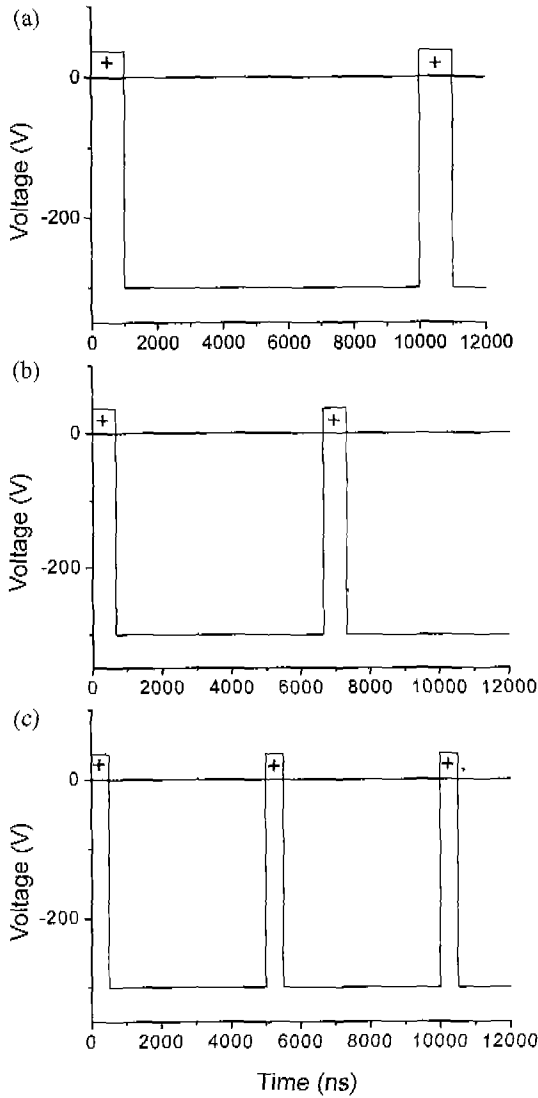


Fig. 6. Asymmetric bipolar pulse with 90% duty cycle at different frequency; (a) 100 kHz (b) 150 kHz (c) 200 kHz.

90% duty cycle을 갖는 펄스의 100 kHz에서 200 kHz까지 주파수 변화에 따른 플라즈마의 방전 전압, 증착 속도 그리고 증착 중에 발생한 아크 수를 나타내었다. 펄스 주파수가 증가하면 타겟에 인가되는 시간 평균 전압이 감소한다. 펄스 주파수가 50 kHz씩 증가함에 따라 음의 플라즈마 방전 전압 크기는 약 8 V씩 감소하였다. 플라즈마 방전 전압의 크기가 작아지면 타겟에 대한 이온의 에너지가 작아져 결국 스퍼터링을 감소시키므로 박막의 증착 속도는 감소되었다. 증착 중에 발생한 아크 수는 duty cycle 변화에 따른 현저한 감소 경향과는 다르게 펄스 주파수의 변화에 대해서는 일정한 경향을 보이지 않았다. Belkind⁸⁾에 의하면 펄스 직류 공정에서 아크 발생에 관한 임계의 펄스 주파수가 존재하여 임계 펄스 주파수 이상에서는 아크가 발생하지 않

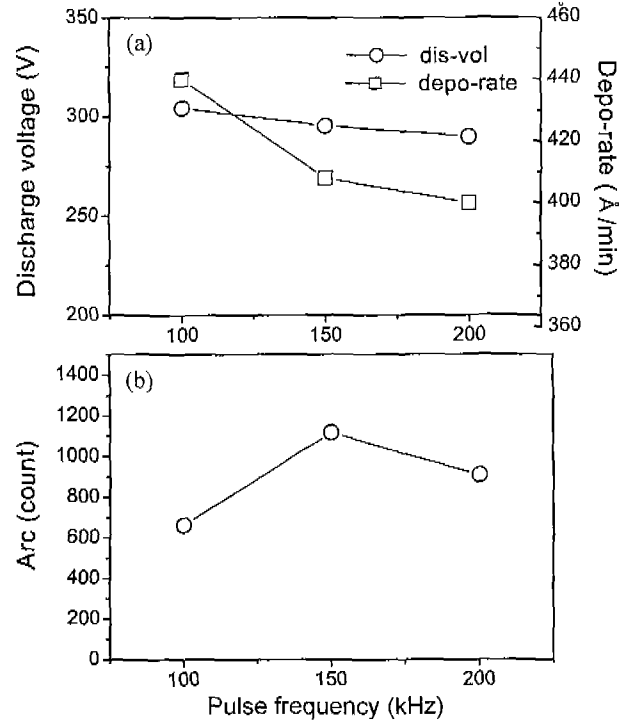


Fig. 7. Pulsed dc process properties with 90% duty cycle at different pulse frequency; (a) discharge voltage and deposition rate (b) arc count.

으며 임계 펄스 주파수는 duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 감소된다고 하였다. 반면에 Jonsson 등⁹⁾은 아크를 발생시키는 타겟 표면 위에 절연층의 형성이 펄스 주파수에 의존하지 않는 결과를 발표하였다. 본 실험에서 아크를 발생시키는 타겟 표면 위에 절연층의 형성은 펄스 주파수와 duty cycle 뿐만 아니라 타겟 오염에 영향을 미칠 수 있는 챔버의 기본 진공도 및 증착 압력 그리고 pre-sputtering 시간 등에도 의존한 것으로 판단되며 이러한 의존성을 갖는 타겟 표면 오염도의 영향 때문에 펄스 주파수에 따른 아크 발생은 일정한 경향을 나타내지 않은 것으로 사료된다.

Fig. 8에는 90% duty cycle을 갖는 펄스의 100 kHz에서 200 kHz까지 주파수에 따른 AlN 박막의 미세 조직을 나타내었다. 증착된 AlN 박막은 각 조건에서 모두 표면 입자의 모양이 낱알 형태로 이루어진 균일하며 치밀한 주상조직을 가졌으며 펄스 주파수가 증가함에 따라 입자 크기가 증가하였다. 펄스 주파수가 증가할수록 감소된 플라즈마 방전전압으로 원자의 표면 이동도는 감소되었지만 증착 속도의 감소로 인해 충분한 원자 이동시간이 주어졌고 펄스 주파수 증가에 따른 플라즈마 방전전압의 감소보다는 증착 속도의 감소가 더 크므로 증착 속도 감소에 상대적으로 더 큰 영향을 받아 입자 크기는 펄스 주파수 증가에 따라 증가한 것으로 사료된다.

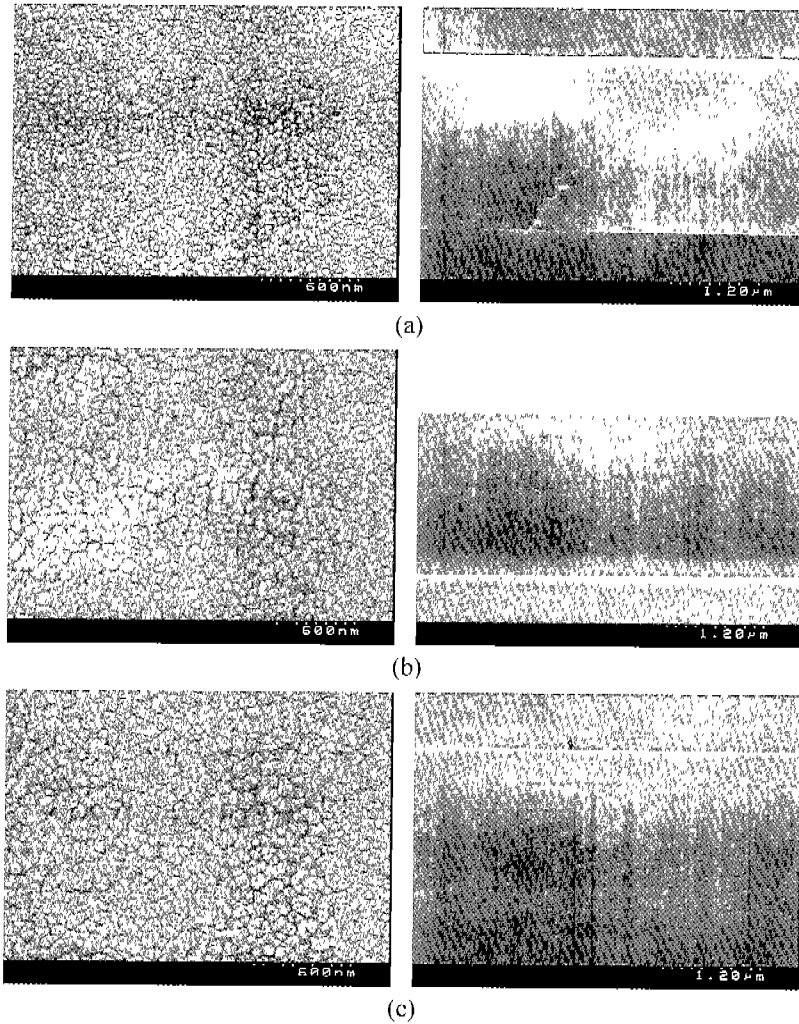


Fig. 8. SEM micrographs of AlN thin films deposited by pulsed dc reactive sputtering with 90% duty cycle at different frequency; (a)100 kHz (b) 150 kHz (c) 200 kHz.

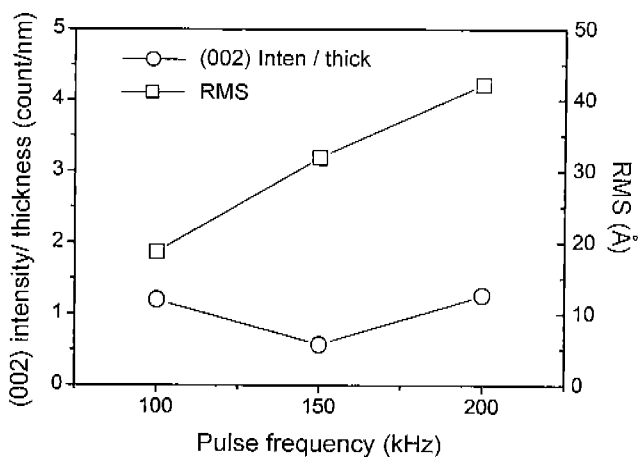


Fig. 9. Normalized (002) intensity and RMS value of AlN thin films by asymmetric bipolar pulsed dc reactive sputtering at different pulse frequency with 90% duty cycle.

Fig. 9에는 90% duty cycle을 갖는 펄스의 100 kHz에서 200 kHz까지 주파수에 따른 AlN 박막의 c축 배향성과 표면 거칠기를 나타내었다. 단위 두께에 대한 (002)피크 강도로 c축 배향성을 그리고 RMS 값으로 표면 거칠기를 표현하였다. c축 배향성은 펄스 주파수에 따라 불규칙한 경향을 보였고 상대적으로 가장 많은 아크가 발생한 150 kHz 펄스 주파수에서 가장 낮은 c축 배향성을 나타내었다. 증착 중에 발생하는 아크는 타겟과 기판에 손상을 끼치며 타겟 표면으로부터 미립자를 발생시켜 성장되는 박막의 결정성을 저하시키며 박막 내에 결함을 형성시킬 수 있다.⁵⁾ Fig. 3(b)와 Fig. 5 그리고 Fig. 7(b)와 Fig. 9를 고려하면 증착 중에 발생한 아크 수가 많을수록 c축 배향성이 저하되는 것을 알 수 있다. 표면 거칠기는 Fig. 4의 미세 조직에서 알 수 있듯이 펄스 주파수의 증가에 따라 증가된 입자 크기로 인해 표면의 굴곡이 크게 되어 표면 거칠기가 증가된 것으로 판단된다.

4. 결 론

REFERENCES

펄스 직류 공정에서 100 kHz에서 200 kHz까지 펄스 주파수의 변화 및 70%에서 90%까지 duty cycle의 변화에 따른 아크 발생과 AlN 박막의 성장 거동을 관찰하였다. 펄스 직류 전원을 이용하여 타겟에 펄스를 인가할 때 양의 펄스를 첨가하여 증착 중에 아크를 발생시키는 타겟 표면위에 절연층의 생성을 억제 및 제거하여 안정한 공정을 이룰 수 있었다. Duty cycle에서 양의 펄스 유지 시간이 증가함에 따라 증착 중에 아크 발생이 현저히 감소한 반면에 펄스 주파수 변화에 따른 아크 발생은 일정한 경향을 나타내지 않았고 성장된 AlN 박막의 c축 배향성은 아크 발생 빈도 증가에 따라 저하되었다. 또한 duty cycle과 펄스 주파수의 변화는 플라즈마 방전전압을 변화시켰고 그로 인해 기판에 도달하는 스퍼터된 입자들의 에너지와 증착 속도가 변화되어 AlN 박막의 입자성장 및 결정성에 영향을 미친 것으로 판단된다. AlN 박막은 모든 증착 조건에서 낱알 형태의 표면 입자 모양을 갖는 주상조직이었으며 입자 크기는 양의 펄스 유지 시간과 펄스 주파수가 증가함에 따라 커졌다. 표면 거칠기는 입자 크기에 영향을 받아 입자가 커질수록 표면의 굴곡이 크게되어 증가되었다. 박막의 증착 속도는 양의 펄스 시간과 펄스 주파수가 감소함에 따라 증가하였으며 440 Å/min의 높은 증착 속도를 나타냈다.

본 연구를 통해 비대칭 펄스 직류 반응성 스퍼터링으로 높은 증착 속도를 갖는 양질의 AlN 박막을 제조할 수 있었다. 어떠한 아크도 발생하지 않는 공정과 높은 증착 속도를 갖으며 보다 우수한 박막의 제조를 위해 duty cycle과 펄스 주파수의 조절에 대한 추가적인 연구가 필요하다.

1. S. Strite and H. Morkoc, "GaN, AlN and InN : A Review," *J. Vac. Sci. Tech.*, **B10**(4), 1237-1266 (1992).
2. T. Shiosaki, T. Yamamoto and T. Oda, "Low Temperature Growth of Piezoelectric AlN Film by RF Reactive Planar Magnetron Sputtering," *Appl. Phys. Lett.*, **36**(8), 643-645 (1980).
3. R. G. Gordon, U. Riaz and D. M. Hoffman, "Chemical Vapor Deposition of Aluminum Nitride Thin Films," *J. Mater. Res.*, **7**(7), 1679-1684 (1992).
4. H. -V. Baier and W. Monch, "Growth of AlN on GaAs(110) by Reactive Molecular Beam Deposition," *J. Vac. Sci. Tech.*, **B10**(4), 1735-1739 (1992).
5. J. Sellers, "Asymmetric Bipolar Pulsed DC : The Enabling Technology for Reactive PVD," *Surf. Coat. Tech.*, **98**, 1245-1250 (1998).
6. W. D. Sproul, "New Routes in the Preparation of Mechanically Hard Films," *Science*, **273**(16), 889-892 (1996).
7. R. D. Arnell and P. J. Kelly, "Recent Advances in Magnetron Sputtering," *Surf. Coat. Tech.*, **112**, 170-176 (1999).
8. A. Belkind and A. Freilich, "Using Pulsed Direct Current Power for Reactive Sputtering of Al₂O₃," *J. Vac. Sci. Tech.*, **A17**(4), 1934-1940 (1999).
9. L. B. Jonsson, T. Nyberg, I. Katardjiev and S. Berg, "Frequency Response in Pulsed DC Reactive Sputtering Process," *Thin Solid Films*, **365**, 43-48 (2000).
10. H. C. Lee, "A Study on the Growth Mechanism of AlN Thin Films by Reactive RF Sputtering," Ph. D. Thesis, Korca Advanced Institute of Science and Technology (1994).