

RF-Magnetron 스퍼터링에 의한 Al_xTa_{1-x} 합금박막의 성장 및 구조적, 전기적 특성 분석

송대권 · 이종원 · 전종한*

한밭대학교 신소재공학부, *한밭대학교 응용화학공학부

Growth of Al_xTa_{1-x} Alloy Thin Films by RF-Magnetron Sputter and Evaluation of Structural and Electrical Properties

Daegwon Song, Jongwon Lee, Jonghan Chun*

Division of Advanced Materials, Hanbat National University, Daejeon 305-719

*Division of Applied Chemistry, Hanbat National University, Daejeon 305-719

초 록: 본 연구에서는 RF-Magnetron 스퍼터링 장치를 이용하여 Al_xTa_{1-x} ($x=0.0\sim 1.0$) 합금박막을 성장하였고, 4탐침법, XRD, AFM, micro-Vickers 미소경도계를 사용하여 시료의 구조적, 기계적, 전기적 특성을 분석하였다. Al 조성 $x=0.245$ (Al 24.5 at.%)에서 전기저항이 가장 높게 나타났고, 결정질이 가장 우수하였다. 표면 hillock에 있어서는 낮은 Al 조성영역에서는 x 가 증가할수록 hillock이 감소하다가, $x=0.245$ 에서 hillock이 완전히 배제되었고, 이후 x 증가에 따라 hillock 밀도가 다시 급격히 증가하였다. 미소경도의 경우, Al 조성 $x=0.2\sim 0.45$ 의 영역에서 가장 높은 경도값이 측정되었다. 본 연구의 모든 결과를 종합적으로 고려할 때, Al_xTa_{1-x} 합금박막의 결정질, 전기저항, 표면형상, 미소경도는 상호 밀접한 관계를 가지고 있었으며, Al 조성 $x=0.245$ 에서 가장 우수한 물리적 특성이 나타났다.

Abstract: In this study, Al_xTa_{1-x} ($x=0.0\sim 1.0$) alloy thin films were grown by RF-Magnetron sputtering system, and the structural, mechanical and electrical properties of samples were examined by 4-point probe, XRD, AFM and micro-Vickers hardness profiler. The electrical resistivity was maximum and the crystal quality was optimum for the samples with Al content $x=0.245$ (Al 24.5 at.%). Regarding the surface hillock formation, the hillock density decreased with an increase of Al content for the low Al content range, and the hillock was eliminated for the sample with Al=24.5 at.%. The hillock density increased with the further increase of Al content. The high values of micro-Vickers hardness were obtained for the samples with $x=0.2\sim 0.45$. The results obtained demonstrate that the crystal quality, electrical resistivity, surface morphology and micro-hardness are closely inter-related, and that the optimum physical properties are obtained for the sample with $x=0.245$.

Keywords: Al_xTa_{1-x} , Magnetron Sputtering, Hillock, Crystalline Phase, Optimum Concentraion

1. 서 론

Al-Ta 합금박막은 최근 들어 박막형 트랜지스터 액정 표시소자(TFT-LCD)의 금속배선 및 전극재료¹⁾, n-GaN 발광소자의 오믹전극재료²⁾, ULSI용 Cu 배선금속의 산화 방지막(passivation layer)³⁾, 잉

크젯 프린터의 잉크증발용 면발열체⁴⁾ 등에 많이 활용되고 있는 중요한 재료이다. Al-Ta 합금박막 성장시 일반적으로 형성되는 압축응력을 해소하기 위해서, Al의 확산에 의한 편석 혹은 섬(island) 형성에 의한 hillock이 표면에 발생하게 되는데, 이 hillock은 소자내 각 층간의 전기적 단락상태를 야

기하여 장시간 소자신뢰도에 큰 문제를 야기하는 것으로 알려져 있다⁵⁾. 이 Al-Ta 합금박막의 hillock 문제에 대해서는 그간 어떤 특정 조성에 대해서 형성된 hillock의 미시적 구조 등에 관해서는 미미한 수준의 연구가 진행된 바 있으나⁶⁾, 넓은 범위의 조성영역에 대해서 hillock 형성의 변화 양상을 체계적으로 조사한 연구는 없는 실정이다. 더욱이, 조성에 따른 결정 상(phase) 형성과정을 보인 연구도 문헌상에 존재하지 않거니와, 조성에 따른 전기저항, 미소경도의 변화에 대한 연구도 그 중요성에도 불구하고 전혀 이루어지지 않았다. Al-Ta 박막이 상술한 어떤 응용분야에 적용되더라도, 광범위한 조성에 걸친 막의 표면균일도, 구조적 특성의 안정성, 기계적 특성의 안정성은 소자의 장수명 구동에 큰 영향을 미칠 수 있으므로 집중적으로 연구되어야 하는 사항이다.

본 연구에서는 RF-Magnetron 스퍼터링 장치에 의해 Al_xTa_{1-x} ($x=0.0\sim 1.0$) 합금박막을 성장하고, 결정성, 표면 hillock 형성, 미소경도, 전기저항 등의 구조적, 전기적 특성에 대해 평가한다. 특히, 넓은 범위의 조성(x) 영역에 대하여 RF-Magnetron 스퍼터링장치로 성장한 Al-Ta 박막의 hillock 형성에 관하여 체계적으로 연구를 수행하였다. 본 연구의 목표는 Al_xTa_{1-x} 합금박막의 구조적 특성, 기계적 특성, 전기적 특성이 가장 우수한 조성영역을 결정하여, 상술한 여러 가지 응용분야에 대하여 Al-Ta 합금박막을 가장 효율적으로 적용함에 있다.

2. 실험방법

본 연구의 Al-Ta 합금박막은 RF-magnetron 스퍼터링장치에 의해 성장되었다. 성장챔버는 3개의 2" 마그네트론 건(gun)으로 구성되며, 기판과 건 사이의 거리는 약 8 cm 였다. 타겟은 99.995%의 고순도 Al 타겟과 Ta 타겟을 사용하였다. 2개의 RF 전원공급장치를 사용하여 Al과 Ta의 전원을 독립적으로 조절하여 Al과 Ta의 조성을 조절하였는데, Ta의 전원을 고정한 채 Al에 공급되는 전원을 조절함을 통해 Al과 Ta의 조성을 조절하였다. 기판은 슬라이드 유리기판을 사용하였고, 염산과 아세트산 그리고 메탄올과 탈이온수를 사용하여 세정하였다. Al-Ta 합금박막의 스퍼터링 조건을 최적화하기 위하여 먼저 Al과 Ta의 스퍼터링 조건을 각

각 안정화 한 후, 이들 조건을 토대로 Al-Ta 합금박막의 성장조건을 최적화 하였다. 시도된 여러 가지 조건 중, 기판온도 300°C, 동작압력 1×10^{-2} torr(챔버진공도 1×10^{-6} torr), Ta 전원은 180 W, Al 전원은 180~400 W, 기판회전 5 rpm이 Al-Ta 합금박막의 최적 스퍼터링 조건으로 나타났다. 여러 가지 물성에 미치는 두께의 영향을 배제하기 위하여 박막의 두께는 약 1,300 nm로 고정하였다.

성장된 Al-Ta 합금박막의 결정구조, 결정성을 평가하기 위하여 x-선 회절분석장치(XRD, Rigaku 2500H, $Cu\ k\alpha 1$, $\lambda=0.154056$ nm)를 사용하였다. 그리고 조성에 따른 박막의 전기저항을 측정하기 위하여 4탐침 전기저항측정장치(four-point probe, Jandel Eng CMT-SR200N)를 사용하였다. 접촉저항을 최소화하기 위하여 indium contact를 형성하였고, 시료의 다른 부위를 5회 이상 측정하여 평균값을 산출하였다. 시료의 표면형상과 hillock을 관측하기 위하여 atomic force microscope(AFM, PSIA XE-100, 분해능 <0.15 nm)를 사용하였다. Al-Ta 합금박막의 경도는 Micro-Vickers 미소경도측정기(Akashi HM-122)를 사용하여 측정하였고, 시료의 다른 부위를 다수 측정하여 평균값을 산출하여 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

Al-Ta 합금박막의 전기저항을 그림 1에 나타냈

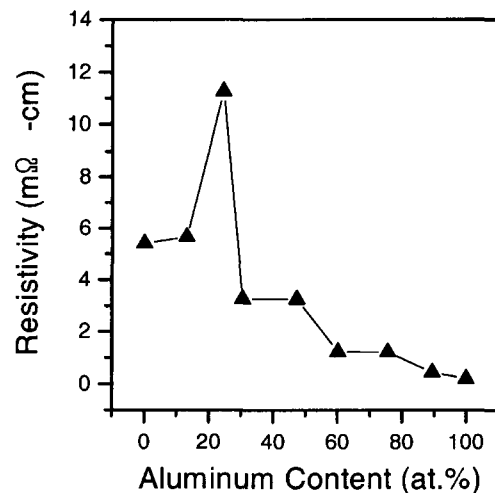


Fig. 1. Electrical resistivity plotted as a function of Al content.

는데, 순수 Ta의 전기저항은 약 5.3 mΩ-cm로 나타났다. Al의 조성이 24.5 at%에서 전기저항은 최대치(약 11.2 mΩ-cm)를 이루었고, 이후 Al 조성이 30 at%를 넘어가면서 전기저항은 급격히 감소하였으며, 순수 Al으로 가면서 전기저항은 최소치를 이루었다. 이와 같이 어떤 특정 조성에서 높은 전기저항을 얻을 수 있다는 사실은, 본 Al-Ta 합금박막을 전술한 바와 같이 잉크젯프린터와 같은 정보 표시용 소자의 면발열체로 제작할 때는 중요한 의미를 지닌다. 즉, 단위시간당 발열효율은 시료의 전기저항에 직접적으로 비례하기 때문에 전기저항이 높은 조성은 실제적으로 유용한 기초자료로 활용될 수 있는 것이다.

그림 2에는 본 연구에서 성장한 Al_xTa_{1-x} 합금박막의 Al 조성(x)에 따른 XRD 회절패턴을 나타냈는데, 순수 Ta(x=0.0)의 경우 Ta의 고유피크인

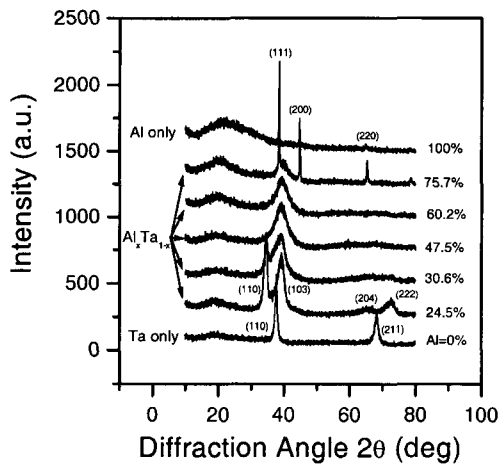


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of Al_xTa_{1-x} alloy thin films (x=0.0~1.0).

Table 1. Diffraction angles and hkl indices obtained from measured experimental data and from standard JCPDS card

| Measured | | JCPDS | |
|----------|-----|--------|-----|
| 2θ | hkl | 2θ | hkl |
| 34.464 | 110 | 33.929 | 110 |
| 39.384 | 103 | 39.344 | 103 |
| 65.348 | 204 | 65.244 | 204 |
| 73.156 | 222 | 73.396 | 222 |

*2θ and hkl were obtained from ref. 7.

(110)과 (211) 피크가 나타났고, 순수 Al(x=1.0)의 경우에는 (111), (200), (220) 피크가 나타났다. Al_xTa_{1-x} 합금의 경우 Al₃Ta 상의 (110), (103), (204), (222) 피크가 나타났는데, Al 조성이 30% 이상인 시료에 대하여는(103) 피크가 우세하게 나타났다. 특히 Al 조성이 75.7 at% 이상이 되면 Al_xTa_{1-x} 상과 Al 상이 혼재하였다. 표 I에는 그림 2에서 나타난 Al-Ta 박막의 회절각을 JCPDS 데이터⁶⁾와 비교한 결과를 나타내었다. 측정된 회절각은 각각 34.464°, 39.384°, 65.348°, 73.156°로서 JCPDS 상의 Al₃Ta 상의 회절각 33.929°, 39.344°, 65.244°, 73.396°와 거의 일치하고 있으며, 이에 대응한 면지수는 각각 (110), (103), (204), (222)였다. 따라서 본 연구에서 얻은 Al-Ta 합금은 Al₃Ta 합금임을 알 수 있었고, 이는 다른 연구자의 연구결과와도 일치한다⁷⁾. 그림에서 알 수 있듯이 Al=24.5 at%인 시료의 경우 특성피크가 가장 명확히 구분되어 나타났는데, 이를 통해서 이 조성에서 시료의 결정질이 가장 우수한 것을 알 수 있었다. 또한 Al_xTa_{1-x}의 주요피크인(103) 피크의 반가폭(β, full-width at half maximum, FWHM)을 비교해 보아도, Al=24.5 at%의 조성에서 β=2.85°로 가장 반치폭이 낮게 나타났다. 따라서 Al=24.5 at%의 조성에서 전기저항은 가장 높게, 결정질은 가장 우수하게 나타났다.

그림 3은 본 연구의 Al_xTa_{1-x} 합금박막의 표면형상을 AFM으로 관측한 내용으로서 그림 3(a)~(f)는 Al 조성 x가 각각 0.0, 0.131, 0.245, 0.306, 0.602, 0.895에 해당되는 시료이다. 그림에서 전반적으로 나타났듯이 본 연구에서 RF-마그네트론 스퍼터링 장치로 성장한 Al-Ta 합금박막의 표면에는 조성에 따라 많은 hillock이 존재하였다. 전술한대로 본 Al-Ta 합금박막이 최근에는 TFT-LCD용 배선재료 및 금속전극재료로⁸⁾, 혹은 n-GaN를 사용한 발광소자의 전극재료로⁹⁾ 많은 각광을 받고 있는데, 이들 용도로 Al-Ta을 사용할 때, 혹은 소자제작과정의 어닐링 등과 같은 과정에서 hillock이 발생하면 소자내 각층간의 전기적 단락(electrical short) 현상이 발생되어 소자 구동에 큰 어려움을 겪게 된다¹⁰⁾. 그림 3에서 알 수 있듯이 Al 조성 (x)이 낮은 영역에서는 x가 증가할수록 hillock의 밀도가 감소하다가 x=0.245에서는 hillock이 완전히 배제된 Al-Ta의 표면형상을 얻을 수 있었다. 이후 x 증가에 따라 hillock 밀도가 다시 급격하게 증가함을 알 수 있었다. Al-Ta 합금시스템

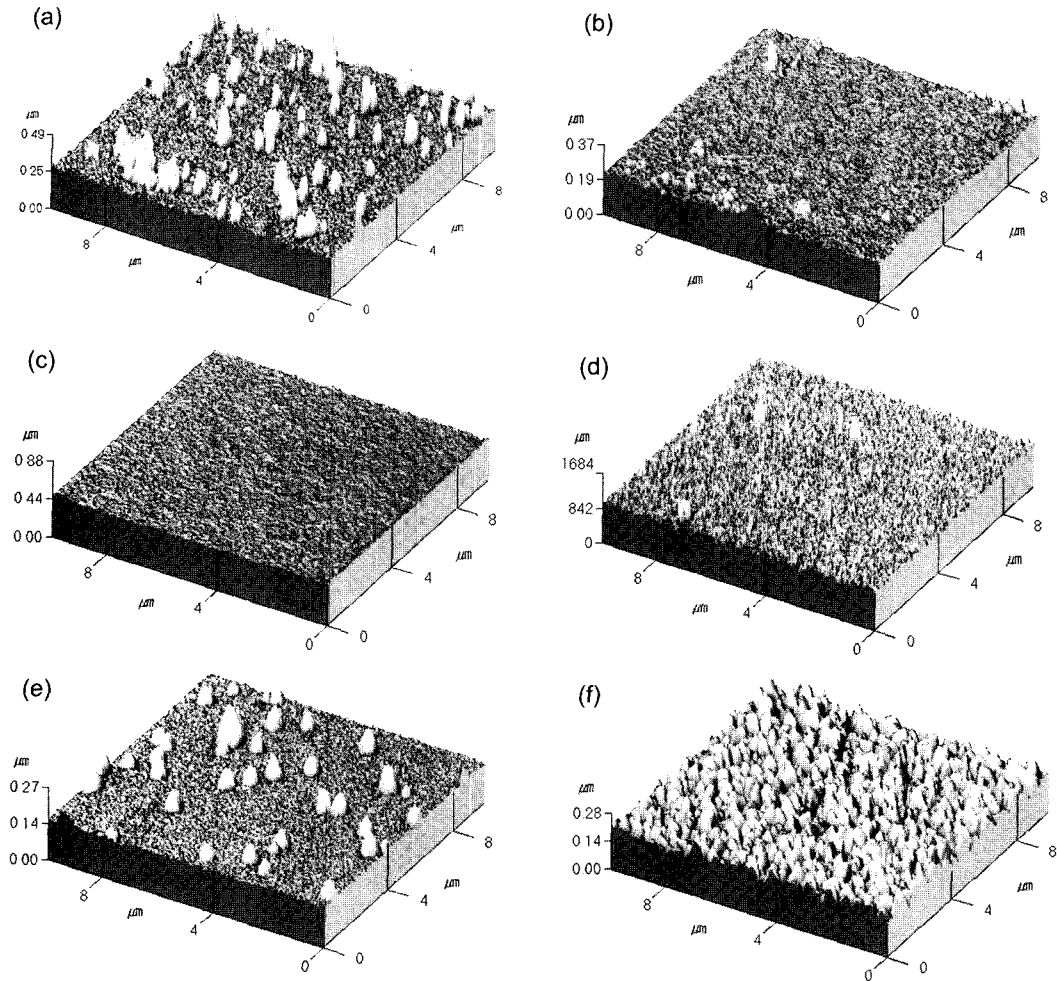


Fig. 3. AFM images of $\text{Al}_x\text{Ta}_{1-x}$ thin films. (a) $x=0.0$ (b) 0.131 (c) 0.245 (d) 0.306 (e) 0.602 (f) 0.895.

에서 발생하는 이같은 hillock 현상은 성장시 발생하는 박막의 압축응력을 해소하기 위해서 Al의 확산에 의해 주로 형성되는 내부 미세입자의 응집에 의한 편석 혹은 섬 형성으로 설명할 수 있다¹¹⁾.

전술한대로, 본 Al-Ta 합금박막은 TFT-LCD의 금속배선재료, n-GaN 발광소자의 오믹전극재료, 잉크젯프린터와 같은 정보표시소자의 면발열체 등으로 주로 활용되는 중요한 재료인데, 이들 소자로 제작할 때 소자공정상 기계적 가공(lapping/polishing), 어닐링 등의 공정이 필연적으로 결부되므로 재료의 기계적, 구조적 안정성은 중요한 인자로 볼 수 있다. 이같은 관점에서 Al-Ta 박막의 Micro-Vickers 미소경도를 측정하여 그 결과를 그림 4에 실었다. Al 조성 (x)가 증가함에 따라 미소

경도가 증가하다가 $x=0.2\sim 0.45$ 영역에서 미소경도값이 최고치를 이루다가, 그 이상으로 조성 x 가 증가하면 미소경도는 급격히 감소하였다. 특기할만한 점은, 일반적으로 Ta의 경도가 Al의 경도보다 월등히 높음에도 불구하고 Ta 자체의 경도값보다 $x=0.2\sim 0.45$ 의 조성을 가지는 Al-Ta 합금의 경도가 높게 나타난 점인데, 이들 결과와 그림 1, 그림 2, 그림 3의 결과를 종합적으로 고려할 때 결정질과 표면형상이 우수한 조성영역에서 미소경도값 역시 높게 관측되었다는 점을 알 수 있었다.

4. 결 론

본 연구에서는 RF-Magnetron 스퍼터링 장치를

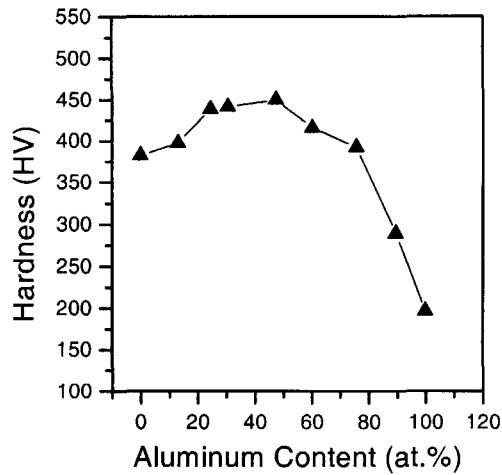


Fig. 4. Micro-Vickers hardness plotted as a function of Al content.

이용하여 $\text{Al}_x\text{Ta}_{1-x}$ ($x=0.0\sim 1.0$) 합금박막을 성장하였으며, 여러 가지 물리적 특성을 평가한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) Al 조성 $x=0.245$ (24.5 at.%)에서 전기저항이 가장 높게 나타났다. (약 $11.2 \text{ m}\Omega\text{-cm}$)
- (2) Al 조성 $x=0.245$ (24.5 at.%)에서 Al-Ta 합금박막의 결정질이 가장 우수한 것으로 나타났다.
- (3) 표면 hillock의 경우, Al의 조성 (x)이 낮은 영역에서는 x 가 증가할수록 hillock 밀도가 감소하다가 $x=0.245$ 에서 hillock이 완전히 배제된 표면을 얻었고, 이후 x 증가에 따라 hillock이 다시 급격히 증가하였다.
- (4) Al 조성 $x=0.2\sim 0.45$ 의 합금영역에서 미소경도가 가장 높게 나타났다.
- (5) 본 연구의 모든 결과를 종합적으로 고려할

때, RF-Magnetron 스퍼터로 성장한 $\text{Al}_x\text{Ta}_{1-x}$ 합금박막의 경우, 결정질, 전기저항, 표면형상, 미소경도는 상호 밀접한 관계를 가지고 있었으며, Al 조성 $x=0.245$ 에서 가장 우수한 물리적 특성이 나타났다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 국립한밭대학교 환경개선형신소재개발센터의 지원에 의한 것입니다.

참고문헌

1. T. Tukada, Proc. 12th Int. Display Research Conf. (Japan Display 1992), 325 (1992).
2. A. T. Pig, M. Asifkhan, I. Adesida, *J. Electron. Mater.*, 25, 819 (1996).
3. M. Takeyama, A. Noya, M. Taguchi, T. Ichikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35, 704 (1996).
4. R. A. Askeland, W. D. Childer, W. R. Sperry, *HP Journal*, 39, 28 (1988).
5. T. Ohnishi, E. Iwamura, K. Takagi, T. Watanabe, *J. Vac. Sci. Technol.*, A15, 2339 (1997).
6. JCPDS 카드번호 02-1128.
7. T. Ohnishi, E. Iwamura, K. Takagi, *Thin Solid Films*, 340, 306 (1999).
8. E. Iwamura, T. Ohnishi, K. Yoshikawa, *Thin Solid Films*, 270, 450 (1995).
9. B. P. Luther, S. E. Mohney, J. M. Delucca, R. F. Karlicker, Jr., *J. Elec. Mater.*, 27(4), 196 (1998).
10. Y. K. Lee, N. Fujimura, T. Ito, *J. Vac. Sci. Technol.*, B9, 2542 (1991).
11. T. Hara, T. Okuda, S. Nagano, T. Ueda, *J. Electrochem. Soc.*, 142, 1946 (1995).