

이중 이온빔으로 제작한 Ta₂O₅ 박막의 기판 온도 및 보조 이온빔 에너지에 따른 굴절률과 잔류응력의 변화

윤석규[†] · 김용탁 · 김희경* · 김명진* · 이형만* · 윤대호

성균관대학교 신소재공학과
*전자부품연구원 광부품연구센터
(2004년 10월 15일 접수; 2004년 12월 2일 승인)

Change of Refractive Index and Residual Stresses of Ta₂O₅ Thin Film Prepared by Dual Ion Beam Sputtering Deposition as the Substrate Temperature and Assist Ion Beam Energy

Seok-Gyu Yoon,[†] Yong-Tak Kim, Hwekyung Kim,* Myoung-Jin Kim,*
Hyung-Man Lee,* 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

(Received October 15, 2004; Accepted December 2, 2004)

초 록

이중 이온빔 스퍼터링(Dual Ion-Beam Sputtering, DIBS)과 단일 이온빔 스퍼터링(Single Ion-Beam Sputtering, SIBS)을 사용하여 기판의 온도와 보조 이온빔 에너지 변화에 따라 Ta₂O₅ 박막의 광학적 특성과 박막에 존재하는 응력의 변화에 관해 관찰하였다. SIBS 방법에 의해 증착되어진 박막의 굴절률은 150°C에서 최고 2.144를 나타내었으며, 150°C 이상에서는 감소하였다. DIBS 방법에 의해 증착된 Ta₂O₅ 박막은 기판의 온도가 증가함에 따라 200°C에서 최고 2.117의 굴절률을 나타내었다. 100°C 미만의 저온 DIBS 증착은 박막에 존재하는 응력을 낮추었으나 100°C 이상의 고온 증착시에는 박막에 존재하는 응력이 컸다. 보조 이온빔 어시스트 한 경우, 보조 이온빔 에너지가 250 V에서 350 V로 증가함에 따라 증착된 Ta₂O₅ 박막의 굴절률은 2.185로 증가하였으나, 350~650 V 인 구간에서는 굴절률이 감소하는 경향을 나타냈다. 또한, 보조 이온빔 에너지가 증가함으로써 박막에 존재하는 응력이 감소하여 650 V에서 0.1834 GPa를 나타내었다.

ABSTRACT

The optical properties and intrinsic stress of Ta₂O₅ thin films deposited by Dual Ion-Beam Sputtering (DIBS) and Single Ion-Beam Sputtering (SIBS) were studied as a function of the substrate temperature and assist ion beam voltage. The refractive index showed the maximum value ($n = 2.144$) at 150°C in the SIBS process. When the substrate temperature has above 150°C in the SIBS process, the refractive index decreased. In the DIBS process, the increase of the substrate temperature affected the increase of the refractive index at a maximum value ($n = 2.117$, at 200°C). The low temperature process ($< 100^\circ\text{C}$) can greatly reduce residual stress with the assist ion gun, but the high temperature process was unaffected. As the assist ion beam voltage increase from 250 to 350 V, the refractive index increased to 2.185. However, the refractive index was decreased at the range of 350~650 V. As the assist ion beam voltage increased, the stress of the deposited film decreased to 0.1834 GPa at 650 V.

Key words : Ta₂O₅, Dual ion beam sputtering, Refractive index, Intrinsic stress, Ion beam voltage

1. 서 론

증착된 박막에 걸리는 잔류응력은 기판과 코팅된 박막 간의 계면에서 intrinsic stress와 thermal stress가 복합적으로 발생된다. Intrinsic stress는 박막이 성장되는 과정에서

즉, 증착되는 재료와 기판, 증착 조건에 따라 다르게 발생되고 thermal stress는 박막 성장 후 기판과 박막간의 열 팽창계수의 차이에 의해 발생된다. 이렇게 증착된 박막에 존재하는 잔류응력은 박막의 물리적특성, 밀착력, 결정학적인 결함, 전기저항, 광 굴절률등에 영향을 미친다.¹⁻³⁾

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 증착조

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

건에서 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 이용한 이온 충격과 기판 가열 등의 방법으로 성장과정에서 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 기둥구조를 제거·감소시키는 방법에는 박막이 증착되고 있는 동안 이온들로 박막에 충격을 주어 박막의 기둥구조를 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, DIBS)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 스퍼터링 방법과 단

일 이온빔 스퍼터링 방법을 사용하여 Ta₂O₅를 증착시켰고, 기판의 온도변화와 보조 이온빔 에너지를 변화시켜 증착되는 박막의 광학적, 기계적 특성을 비교 분석하여 WDM filter 제작을 위한 다층 박막 증착시 보다 우수한 증착 조건을 확립하고자 하였으며, 증착된 Ta₂O₅ 박막의 특성에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 실험 방법

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 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 형태

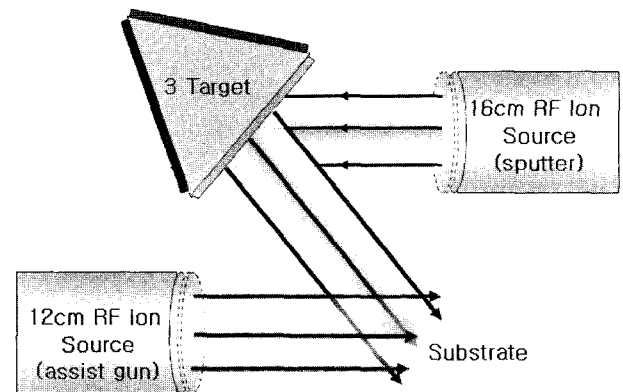


Fig. 1. Schematic diagram of dual ion-beam sputtering system.

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]	Ar gas flow [sccm]	Beam voltage [V]	Ar:O ₂ gas flow [sccm]	
# 1					50
# 2			550		100
# 3					150
# 4					200
# 5	1250	18	250	3:12	
# 6			350		
# 7			450		
# 8			550		100
# 9			650		

로 조사된다.¹¹⁾ 타깃 물질과 기판이 양전하로 대전되는 것을 방지하기 위하여 Radio Frequency Neutralizer (RFN) 가 스퍼터링 RF 이온총과 보조 증착 RF 이온총에 각각 장착되었다. 타깃 물질은 지름이 14 inch 원형의 Tantalum (Ta, 99.95%)을 사용하였다. 본 실험 조건을 Table 1에 나타낸 것과 같이 주 이온빔과 보조 이온빔의 전압과 전류는 각각 1250 V, 600 mA와 550 V, 150 mA이었으며, 주 이온빔의 Ar가스는 18 sccm의 일정한 양으로 흘러주었으며, reactive gas(O₂)는 12 sccm으로 흘러주었다.

증착된 Ta₂O₅ 박막의 곡률 반경을 측정하여 Stony 식에 의해 박막의 잔류응력을 계산하였다. Stony 식¹²⁾은 다음과 같다.

$$\sigma = \frac{1}{6E(1-\nu)} \frac{t_s^2}{t_f R} \quad (2-1)$$

여기서 $1/E(1-\nu)$ 은 기판의 biaxial modulus, t_s 와 t_f 는 각각 기판과 증착된 박막의 두께를 나타내며, R 은 기판 위에 증착된 박막의 휘어짐 정도를 측정한 곡률 반경이다.

증착된 Ta₂O₅ 박막의 광학적 특성을 조사하기 위하여 spectrophotometer와 ellipsometry를 이용하여 1550 nm에서 굴절률(n)을 얻었다. 또한 Atomic Force Microscopy (AFM)를 이용하여 박막의 표면 거칠기를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 기판의 온도에 따른 Ta₂O₅ 박막의 굴절률과 잔류응력을 DIBS와 SIBS 방법으로 증착하여 나타내었다. 기판의 온도가 50°C에서 200°C까지 증가함에 따라 SIBS에 의해 증착시킨 박막의 굴절률은 2.1098에서 2.1441으로 온도 변화에 따라 굴절률이 급격히 변하는 결과가 나타났다. 이에 반해 DIBS로 증착시킨 박막은 온도가 증가함에 따라 굴절률이 2.1006에서 2.1117로 선형적인 증가

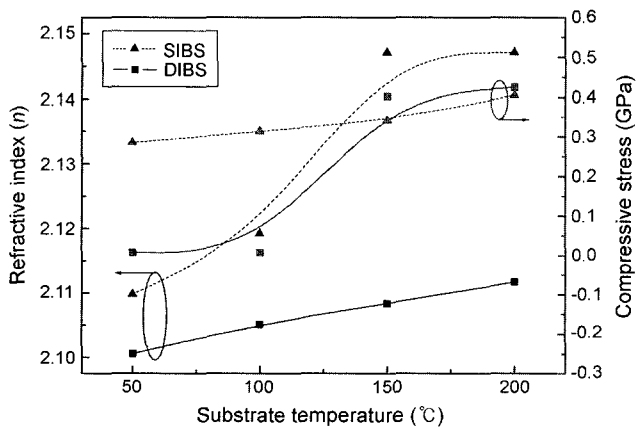


Fig. 2. The compressive stress and refractive indices of the SIBS, and DIBS as a function of substrate temperature.

를 나타냈다. 온도가 증가함에 따라 굴절률이 증가한 것은 박막 형성시 기판의 온도가 증가하면 기판 표면에서 증착되는 입자가 열에너지에 의해 높은 이동도를 가진다. 이러한 높은 이동도를 가진 입자는 박막이 형성되면서 치밀한 미세구조를 가진 밀한 박막이 형성되므로 굴절률이 증가한 것으로 사료된다. SIBS에 의해 증착 되어진 Ta₂O₅ 박막은 기판온도가 증가함에 따라 불안정한 굴절률 변화를 나타내었으며, DIBS의 방법에 의해 증착된 박막이 기판의 온도 변화에 적게 민감한 결과가 나타났다.

기판의 온도가 증가함에 따라 SIBS 방법으로 증착시킨 박막의 잔류응력은 0.2849 GPa에서 0.4052 GPa으로 선형적인 증가를 나타내었으나, DIBS 방법으로 증착시킨 박막은 0.0067 GPa에서 0.4251 GPa으로 온도가 증가함에 따라 급격한 변화를 나타내었다. SIBS 방법에 의해 증착된 박막의 잔류응력은 저온(50~100°C)에서 증착된 박막이 비교적 큰 잔류응력을 나타내었으나, DIBS 방법으로 증착된 박막은 저온에서 낮은 잔류응력을 나타내었다. 증착된 박막에 존재하는 잔류응력은 박막을 형성하는 과정에서 여러가지 요인에 의해 발생하는 intrinsic stress와 기판과 증착되는 박막간의 열팽창 계수 차이에 의한 thermal stress로 나눌 수 있다. 본 연구에서 SIBS 방법과 DIBS 방법으로 intrinsic stress를 조사한 결과 DIBS 방법으로 박막 형성시 저온 증착에서 보다 낮은 잔류응력을 나타낼 수 있었다. 또한 기판의 온도를 낮추어 박막 증착 후 상온으로 냉각하는 과정에서 발생하는 thermal stress를 감소시킬 수 있었다.

Fig. 3은 SIBS와 DIBS 방법으로 기판의 온도 증가에 따라 표면 거칠기의 변화를 AFM으로 분석한 결과이다. 기판의 온도가 50°C에서 150°C로 증가함에 따라 SIBS, DIBS 방법으로 증착되어진 박막 모두 표면 거칠기가 감소되는 결과를 나타났고, 150°C 이상에서는 다시 증가하는 결과가 나타났다. 기판으로 향해 오는 입자가 기판에서 증착

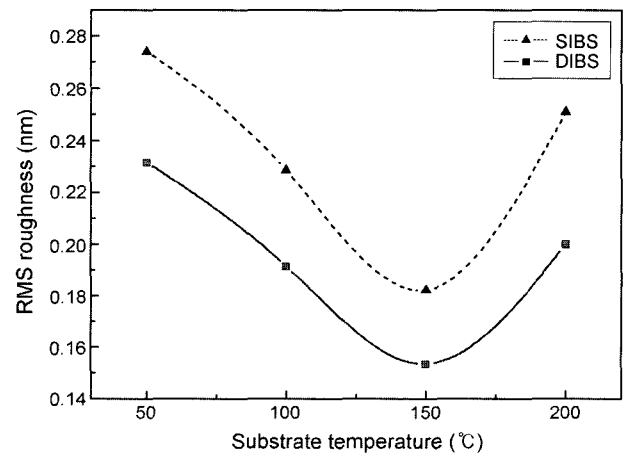


Fig. 3. The RMS roughness of Ta₂O₅ films as a function of the substrate temperature using the SIBS and DIBS processes.

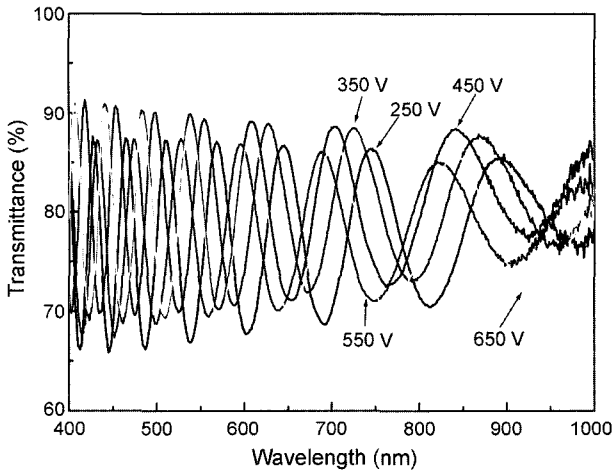


Fig. 4. The transmittance spectra of the Ta₂O₅ thin films at the different assist ion beam voltages.

될 때 기판 표면의 온도가 증가함에 따라 표면 입자의 이동도가 증가하여 150°C에서 가장 미려한 표면을 나타내었으며, 기판의 온도가 200°C에서 표면 거칠기가 증가된 이유는 박막 증착 후 상온까지 냉각하는 과정에서 발생한 열변형에 의해 거칠기가 증가된 것이라 사료된다. SIBS 방법으로 증착시킨 박막의 표면 거칠기 보다 DIBS 방법으로 증착시킨 박막의 표면 거칠기가 낮은 결과가 나타났다. 주 이온빔으로 주사하여 증착된 박막에서 나타나는 표면 거칠기를 보조 이온빔으로서 추가적으로 주사해 줌으로써 보다 미려한 표면 거칠기를 얻을 수 있었다.

Fig. 4는 보조 이온빔 에너지 변화에 따라 증착된 박막의 투과도를 spectrometer로 분석한 결과이다. 파장 변화에 따라 투과도가 높은 극점은 λ/4의 점이고, 투과도가 낮은 극소점은 λ/2를 가리킨다. 보조 이온빔 에너지가 증가함에 따라 λ/4의 극점이 단파장 쪽으로 이동하는 결과를 나타냈으며, 보조 이온빔의 에너지가 450 V인 조건에서 가장 손실이 작은 스펙트럼을 얻을 수 있었다.

Fig. 5는 다양한 보조 이온빔 에너지에 따른 Ta₂O₅ 박막의 굴절률과 잔류응력을 나타내었다. 보조 이온빔 에너지가 250 V에서 350 V로 증가함에 따라 Ta₂O₅ 박막의 굴절률은 2.185로 증가하였다. 그러나 보조 이온빔 에너지가 350~650 V인 구간에서는 Ta₂O₅ 박막의 굴절률이 감소하는 결과를 나타내었다. 보조 이온빔 어시스트로서 박막 형성시에 보조 이온빔에 의해 기판에서 resputter된 입자가 기판으로 향하는 입자와의 충돌로 인하여 에너지를 잃고, 이렇게 낮은 에너지를 가진 입자가 응축되어 기판에 증착됨으로 낮은 밀도를 형성하게 되고 결국 굴절률이 감소하는 결과를 나타내었다. 이런 현상은 보조 이온빔의 에너지가 크면 클수록 기판에서 튀기는 입자의 수와 에너지가 증가하여 증착되는 입자와의 충돌로 인해 입자의 운동에너지를 감소시켜 박막형성시에 낮은 밀도를 형성

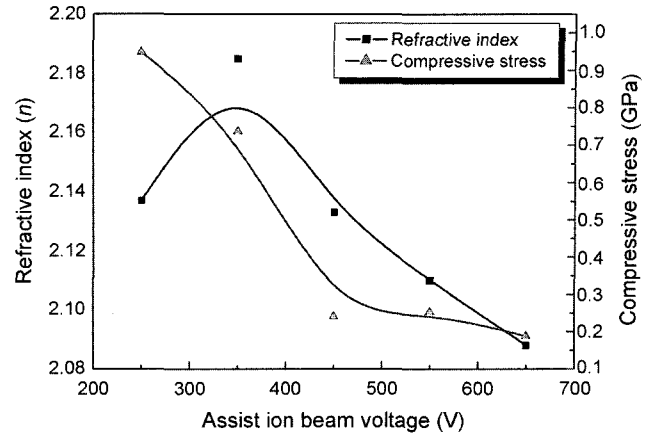


Fig. 5. The compressive stress and refractive indices of the deposited Ta₂O₅ thin films as a function of the assist ion beam voltage.

하게 하고 결과적으로 낮은 굴절률을 가진 박막을 형성하게 된다.

Fig. 5에서 보조 이온빔 에너지 변화에 따라 Si 기판위에 증착된 Ta₂O₅ 박막은 모두 압축응력을 나타내었으며, 보조 이온빔 에너지가 증가함에 따라 650 V에서 잔류응력이 0.1834 GPa로 감소되는 결과가 나타났다. 이러한 박막의 잔류응력에 완전히 뒤바침할 수 있는 모델은 아직까지 존재하지 않지만, Davis¹³⁾와 Lee¹⁴⁾에 의해 제안한 이온빔 충돌에 의한 박막에 존재하는 응력을 설명한 모델이 있다. 이 모델에서는 이온 에너지가 박막에 존재하는 압축응력에 상당히 밀접한 관계가 있다고 설명한다.

$$\sigma_{max} \propto (j/R)^{7/10}, \quad \sigma \propto \frac{Y E^{1/2}}{1 - \nu R/j + kE^{5/3}} \quad (3-1)$$

윗식에서, j/R는 표준화된 플럭스, R은 증착 플럭스, j

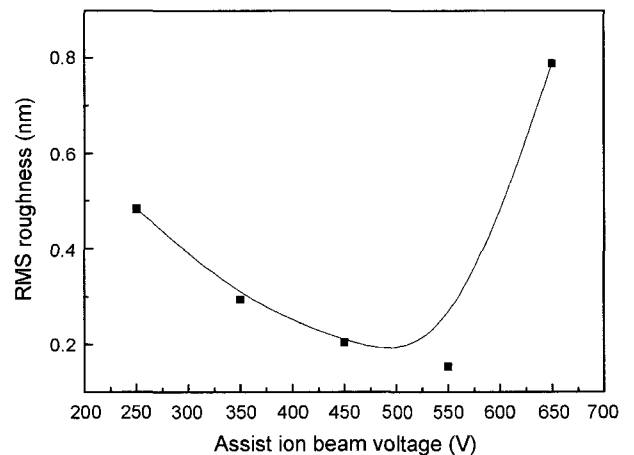


Fig. 6. RMS roughness of the Ta₂O₅ thin films as a function of the assist ion beam voltage.

는 입자 충돌 플럭스를 나타낸다. 식 (3-1)에서 보는 바와 같이 이온 에너지가 증가하면 박막에 작용하는 응력은 E 에 반 비례하여 증착되는 박막에 존재하는 응력을 줄일 수 있다. 본 연구에서 나타난 이온빔 에너지가 증가함에 따라 증착된 박막에 존재하는 응력이 감소한 결과와 상충하는 결과가 나타났다.

Fig. 6은 보조 이온빔 에너지의 증가에 따른 Ta_2O_5 박막의 표면 거칠기를 AFM을 이용하여 관찰하였다. Fig. 6에서 나타난 바와 같이 보조 이온빔 에너지가 250 V에서 550 V로 증가함에 따라 기판의 표면 거칠기가 미려해지는 결과가 나타났으나, 550 V 이상에서는 다시 큰 폭으로 거칠기가 향상되는 결과가 나타났다. 주 이온빔으로 증착된 박막에 보조 이온빔으로 어시스트를 가해 줌으로써 에너지를 가진 입자가 증착된 박막의 표면 입자와 충돌함으로써 박막의 표면 거칠기를 미려하게 만드는 작용을 하였다. 그러나, 550 V 이상에서는 기판에서 resputtering된 입자와 기판으로 향하는 입자와의 충돌로 인하여 에너지가 감소되고 이러한 작은 운동에너지를 가진 입자는 서로 뭉쳐 기판 표면에 덩어리 입자형태로 증착되어 표면 거칠기가 증가되었다고 사료된다.

4. 결 론

이중 이온빔 스퍼터링(Dual Ion-Beam Sputtering, DIBS)과 단일 이온빔 스퍼터링(Single Ion-Beam Sputtering, SIBS)을 사용하여 기판의 온도와 보조 이온빔 에너지 변화에 따라 Ta_2O_5 박막의 광학적 특성과 박막에 존재하는 응력의 변화에 대해 관찰하였다. SIBS에 의해 증착 되어진 Ta_2O_5 박막은 기판온도가 증가함에 따라 불안정한 굴절을 변화를 나타내었으며, DIBS의 방법에 의해 증착된 박막이 기판의 온도 변화에 적게 민감한 결과가 나타났다. SIBS 방법과 DIBS 방법으로 intrinsic stress를 조사한 결과 DIBS 방법으로 박막 형성시 저온 증착에서 보다 낮은 잔류응력을 나타낼 수 있었으며 기판의 온도를 낮추어 박막 증착 후 상온으로 냉각하는 과정에서 발생하는 thermal stress를 감소시킬 수 있었다. 보조 이온빔 에너지 변화에 따른 Ta_2O_5 박막의 경우 보조 이온빔 어시스트로서 박막 형성시에 보조 이온빔 에너지가 증가함에 따라 굴절률이 감소되었으며, 박막에 존재하는 잔류응력 또한 감소되는 결과가 나타났다. 주 이온빔으로 증착된 박막에 보조 이온빔으로 어시스트를 가해 줌으로써 에너지를 가진 입자가 증착된 박막의 표면 입자와 충돌 함으로서 박막의 표면 거칠기를 미려하게 만드는 작용을 하였다. 기판온도가 50~100°C인 영역에서 안정한 굴절률과 낮은 잔류응력을 나타내었으며, 이차 이온빔 에너지가 증가함에 따라 즉, 650 V에서 가장 낮은 잔류응력이 나타났다.

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 TiO_2 Thin Films Prepared by Ion-Beam Assisted Deposition," *J. Opt. Soc. Kor.*, **5** 9-17 (1993).
3. S. G. Yoon, H. K. Kim, G. Y. Kim, M. J. Kim, H. M. Lee, S. H. Lee, C. K. Hwangbo, and D. H. Yoon, "Characteristics Analysis and Manufacture of Ta_2O_5 Thin Films Prepared by Dual Ion-Beam Sputtering Deposition with Change of Ar/ O_2 Gas Flow Ratio of Assist Ion Beam," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **40** [12] 1165-69 (2003).
4. F. Flory, E. Pelletier, G. Albrand, and Y. Hu, "Surface Optical Coating by Ion Assisted Deposition Techniques : Study of Uniformity," *Appl. Optics.*, **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. Tech.*, **11** 666-69 (1974).
6. M. Lottiaux, "Morphology and Structure of TiO_2 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 Ta_2O_5/SiO_2 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 Ta_2O_5 Film Formation with O_2 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 SiO_2 , Ta_2O_5 and Nb_2O_5 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 Ta_2O_5 Thin Film Capacitors Deposited by D.C. 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. Tech.*, **21** 725-29 (1982).
12. G. G. Stoney, "The Tension of Metallic Films Deposited by Electrolysis," *Proc. R. Soc. London Ser.*, **A 82** 1729 (1909).
13. C. A. Davis, "A Simple Model for the Formation of Compressive Stress in Thin Films by Ion Bombardment," *Thin solid Films*, **226** 30-4 (1993).
14. C. C. Lee, C. L. Tien, and J. C. Hsu, "Internal Stress and Optical Properties of Nb_2O_5 Thin Films Deposited by Ion-beam Sputtering," *Appl. Opt.*, **41** 2043-47 (2002).