

분광타원법을 이용한 스퍼터된 Ta_2O_5 박막의 광학적 특성

김선희^a · 이의현^a · 정인우^a · 현장훈^a · 이성용^a · 강만일^b · 류지욱^{b*}

^a충남과학고등학교, 공주 314-920

^b공주대학교 물리학과, 공주 314-701

(2009년 2월 16일 받음, 2009년 3월 20일 수정, 2009년 3월 23일 확정)

본 연구에서는 RF 파워, 기판의 종류, 산소분압비의 다양한 조건으로 RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 Ta_2O_5 박막을 제작하였다. 제작된 Ta_2O_5 박막의 분석을 위해 위상변조방식의 분광타원계를 이용하여 타원상수를 1.0~4.0 eV 영역에 걸쳐 측정하였고, Tauc-Lorentz 분산관계식을 이용하여 박막의 두께와 광학상수를 분석한 결과 제작조건에 따른 광학상수의 크기와 분산형태의 변화가 나타났다. 또한 분산관계식에 의해 분석된 박막의 두께와 광학상수를 이용하여 얻은 투과율 스펙트럼을 UV-Vis 분광광도계에 의해 측정된 값과 비교하여 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수의 신뢰성을 확인하였다.

주제어 : Ta_2O_5 , 분광타원법, RF 마그네트론 스퍼터링, Tauc-Lorentz

I. 서 론

Ta_2O_5 는 밴드 갭이 4.6 eV 정도로 대단히 크고 근자외선에서 적외선까지의 넓은 파장영역에서 높은 광투과율을 가지고 있으며, 화학적, 기계적 안정성이 뛰어난 고급질률 물질이다. 이러한 특성 때문에 Ta_2O_5 는 간섭필터, 광도파로, 기능성 광학박막 등에 많이 사용되고 있다. 또한 DRAM 및 SRAM의 커패시터 절연막 등으로 활용되고 있으며 최적의 화학양론적인 조성비를 갖는 Ta_2O_5 박막을 얻기 위한 다양한 연구가 진행되고 있다 [1~4].

Ta_2O_5 박막은 주로 열산화법, sol-gel법, 스퍼터링(sputtering)법, CVD(Chemical Vapor Deposition)법 등으로 제작되고 있다. 스퍼터링법은 증착 온도가 낮고, 박막의 조성을 쉽게 조절할 수 있는 장점 때문에 화학양론적으로 비교적 안정한 박막의 제작에 많이 이용되고 있다 [5~7].

본 연구에서는 RF 파워, 기판의 종류, 산소분압비의 다양한 조건으로 RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 Ta_2O_5 박막을 제작하였다. 제작된 Ta_2O_5 박막의 분석을 위해 위상변조방식의 분광타원계 [8~10]를 이용하여 타원상수를 1.0~4.0 eV 영역에 걸쳐 측정하였고, Tauc-Lorentz 분산관계식 [10~12]을 이용하여 박막의 두께와 광학상수를 분석하여 그 결과에 대해 논의 하였다. 또한 분산관계식에 의해 결정된 박막의 두께, 광학상수를 이용하여 얻은 투과율 스펙트럼을 UV-Vis 분광광도계에 의해 측정된 값과 비교하여 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수의 신뢰성을 확인하였다.

얻은 투과율 스펙트럼을 UV-Vis 분광광도계에 의해 측정된 값과 비교하여 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수를 평가하였다.

II. 실험 방법

1. 시료의 제작

시료의 제작에 사용된 스퍼터링 장치는 RF 마크네트론 스퍼터링 시스템(태백진공)으로 진공을 형성하고 유지시키는 진공 시스템과 타겟, RF 전원공급장치, 기판홀더, 가스 주입장치, 온도조절장치로 구성되어 있다.

박막의 제작을 위해 5×10^{-6} torr 이하까지 초기 진공 상태를 만든 다음 Ar과 O₂ 가스의 총 양을 30 sccm으로 일정하게 반응실 내로 주입시키면서 RF 파워를 공급하여 플라즈마를 발생시켰다. 제작조건에 따른 박막의 광학적 특성의 변화를 조사하기 위해 RF 파워, 기판의 종류(Si, glass, Al₂O₃), 산소분압비(O₂/Ar+O₂)를 제작 조건으로 하여 박막을 제작하였다. 제작시 기판의 온도는 상온으로 하였으며 Table 1과 Table 2에 박막의 스퍼터링 조건과 제작조건을 나타내었다.

* [전자우편] jwryu@kongju.ac.kr

Table 1. Sputtering condition.

Target	4.0" Ta ₂ O ₅ disk
Base Pressure(torr)	< 5 × 10 ⁻⁶ torr
Total Gas Pressure(torr)	1.5~2.0 × 10 ⁻² torr
Anode-Cathode Spacing	10 cm
Sputtering Gas	Ar(99.999 %)
Reactive Gas	O ₂
Rotating Speed of Substrate	50 rpm
Substrate Temperature	room temp.
Substrate	Si(100), Glass, Al ₂ O ₃ (0001)

Table 2. Deposition condition of samples.

Substrates	RF Power (W)	O ₂ Ratio (%)	Deposited Time (min)
Si(100), Glass, Al ₂ O ₃ (0001)	80	0	30, 60
	100	0	30, 60
		0	27, 30, 60
		5	220
	120	10	220
		15	220

2. 측정 및 분석

제작된 시료의 타원상수 측정에 이용된 타원계(spectroscopic ellipsometer, Jobin-Yvon UVISEL)는 광탄성변조기(photoelastic modulator)를 이용하여 시료에 입사하는 빛의 편광상태를 50 kHz의 주파수로 변조시키는 위상변조방식이다. 광원으로는 출력이 75 W이고 파장 영역이 260~1700 nm인 제논 아크등을 사용하였다. 광측정장치로는 초점거리가 460 mm인 1200 grooves/mm 격자를 갖는 분광기(Jobin-Yvon, HR 460)를 사용하였다. 시료의 표면에 대한 입사각은 glass, Al₂O₃(0001) 기판에 제작된 박막은 65°로, Si(100) 기판에 제작된 박막은 70°로 하였으며 스펙트럼의 측정범위는 1.0~4.0 eV(310~1239 nm)에 걸쳐 측정되었다.

본 연구에서는 Tauc-Lorentz(TL) 분산관계식을 이용하여 1.0~4.0 eV에 대응하는 Ta₂O₅ 박막의 광학상수, 유효두께, void 및 분산관계식의 변수들을 결정하였다. 시료의 기판으로 사용된 Si, glass, Al₂O₃의 광학상수는 Jobin-Yvon사에서 제공된 값을 사용하였다. 시료의 분석모형은 표면거칠기층/박막/기판의 구조로 하였다. 분석변수는 두께, Ta₂O₅와 void 비율 그리고 분산관계식의 변수들을 분석변수로 지정하였고, Bruggerman의 EMA 근사식을 이용하여 Ta₂O₅ 박막의 광학상수를 결정하였다 [9,10].

본 연구에 사용된 TL 분산관계식은 Forouhi-Bloember

분산관계식의 수정 모델이며, Lorentz 모델과 Tauc의 joint density of state의 개념을 덧붙인 모델이다. TL 분산관계식은 비정질 물질의 분석에 많이 활용되고 있으며, 유전함수는 다음과 같이 표현된다.

$$\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2 \quad (1)$$

$$\epsilon_1 = \epsilon_\infty + \frac{2}{\pi} \cdot P \cdot \int_{E_g}^{\infty} \frac{\xi \cdot \epsilon_2(\xi)}{\xi^2 - E^2} d \cdot \xi \quad (2)$$

$$\epsilon_2 = \frac{AE_oC(E - E_g)^2}{(E^2 - E_o^2) + C^2E^2} \frac{1}{E} \quad E > E_g \quad (3)$$

$$\epsilon_2 = 0 \quad E < E_g \quad (4)$$

여기서 E_0 는 피크 전이 에너지(peak transition energy), C는 진동자들의 폐침(broadening)을 나타내며, E_g 는 광학적 밴드 갭(optical band-gap), A는 전이확률에 비례하는 값이다. 또한 ϵ_∞ 는 높은 진동수에서의 유전상수이고, 유전함수의 실수부는 Kramers-Kronig 관계에 의해 유전함수의 허수부를 이용하여 구할 수 있다 [10-12].

제작된 시료의 투과율은 UV-Vis 분광광도계(Scinco, S-3100)를 사용하여, 300~1000 nm의 파장영역에 걸쳐 측정하였고, 측정입사각은 0°로 고정하였다.

III. 결과 및 논의

제작된 Ta₂O₅ 박막의 타원상수에 대한 최적맞춤은 Tauc-Lorentz 분산관계식을 이용하였다. 다양한 기판(Si, glass, Al₂O₃)에 80, 100, 120 W의 RF 파워로 30분, 60분 동안 성장된 Ta₂O₅ 박막의 분석결과를 Table 3과 Fig. 1에 나타내었다. Table 3과 Fig. 1의 결과에서 알 수 있듯이 모든 기판에서 RF 파워의 증가에 따른 성장 두께는 선형적이지 않았다. RF 파워 100 W에서 60분 동안 Si(100) 기판에 성장된 박막의 두께는 179.9 nm로 조사되어 다른 기판에 비해 약 23 nm 정도 작게 나타났다. 그 이유는 Ta₂O₅의 결정구조(orthorhombic)가 Si 기판의 결정구조(입방정계)와 가장 유사하여 박막의 초기 성장이 다른 기판에 비해 보다 규칙적으로 발생했기 때문으로 생각된다 [5]. 성장 시간의 증가에 따른 박막의 성장 두께는 RF 파워 100 W를 제외하

Table 3. Analysis results of Ta₂O₅ films deposited on Si, glass, Al₂O₃ substrate according to various RF power.

Substrates	RF Power (W)	Deposited Time (min)	Ta ₂ O ₅ Layer	Surface Layer	
			Thickness (nm)	Void Ratio (%)	Thickness (nm)
Si(100)	80	30	35.8	50	2.7
		60	90.6	50	2.7
	100	30	53.7	50	0.0
		60	179.9	50	7.5
	120	30	114.6	50	4.9
		60	229.4	50	7.7
Glass	80	30	37.3	70	5.6
		60	95.9	30	5.0
	100	30	43.8	40	7.2
		60	204.4	70	6.4
	120	30	126.6	60	4.2
		60	227.1	70	6.5
Al ₂ O ₃ (0001)	80	30	44.1	30	2.5
		60	88.7	30	5.6
	100	30	54.3	60	1.1
		60	202.5	70	7.1
	120	30	124.1	70	5.2
		60	231.0	70	5.7

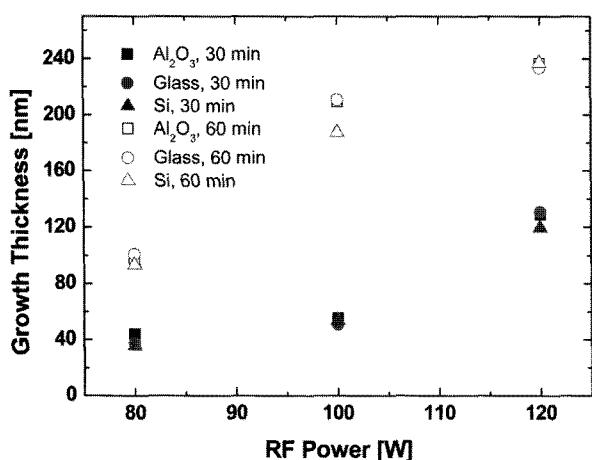


Figure 1. Growth thickness of Ta₂O₅ films deposited on Si, glass, Al₂O₃ substrate according to various RF power.

면 성장 시간에 비례하여 증가하였다.

Fig. 2는 RF 파워 80 W에서 Si(100), glass, Al₂O₃(0001) 기판에 증착된 박막들의 성장시간에 따른 굴절률 스펙트럼의 변화를 나타낸 그림이다. Fig. 2의 결과에서는 Si, Al₂O₃ 기판에 증착된 박막들의 굴절률은 성장시간이 30분에서 60분으로 증가함에 따라 굴절률은 전 에너지 영역에 걸쳐

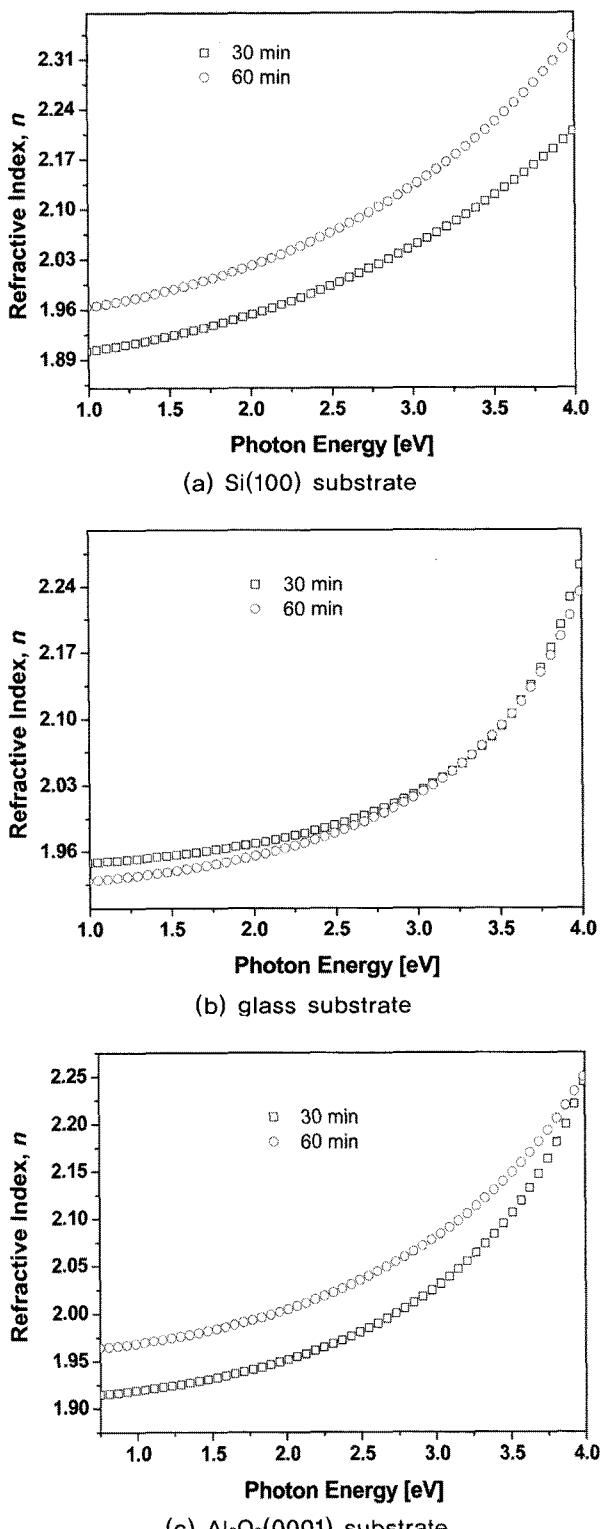
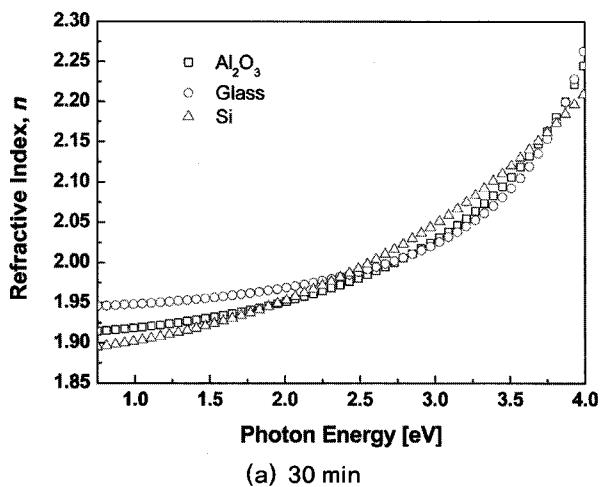
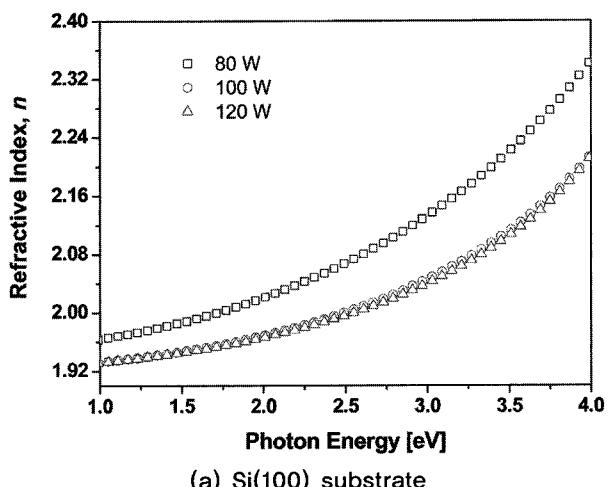


Figure 2. n spectra of Ta₂O₅ films deposited at 80 W RF power according to growth time.

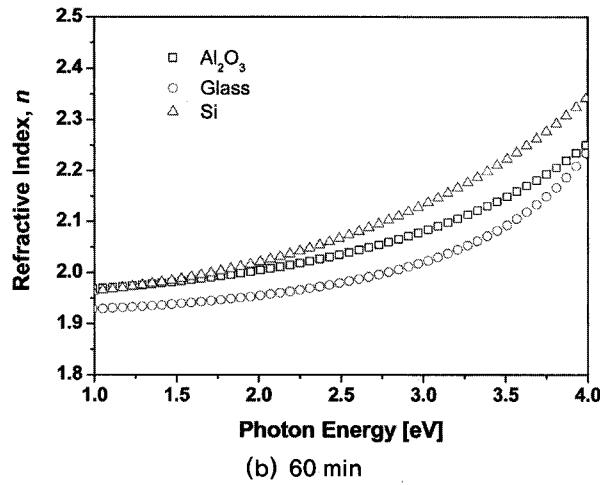
증가하였으나 glass 기판에 증착된 박막에서는 성장시간이 증가함에 따라 굴절률은 아주 근소하게 작게 나타났다. 이



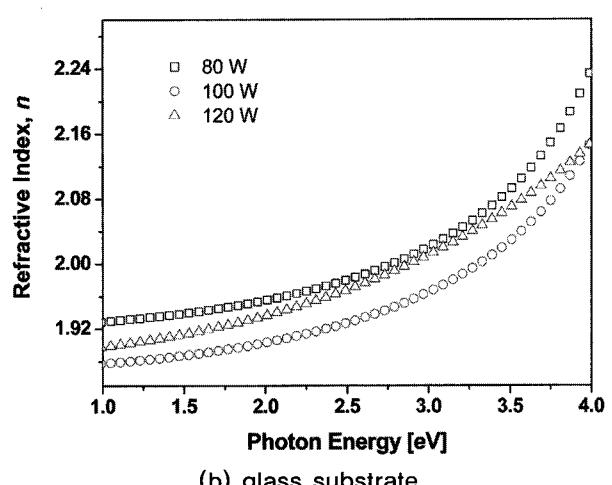
(a) 30 min



(a) Si(100) substrate



(b) 60 min

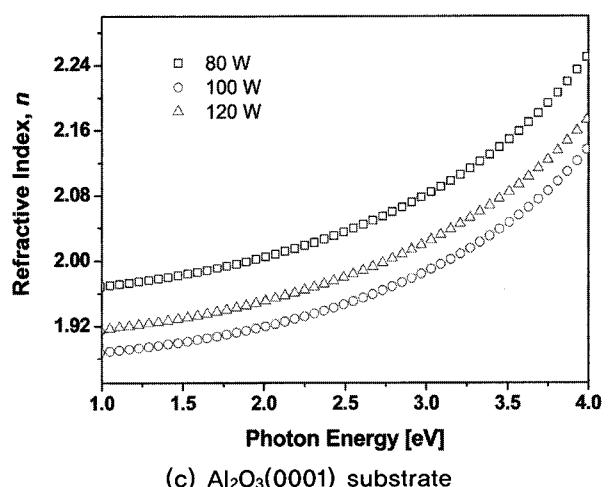


(b) glass substrate

Figure 3. n spectra of Ta_2O_5 films deposited at 80 W RF power according to substrates.

러한 결과는 glass 기판에서 성장된 박막의 조밀도가 박막의 두께가 증가함에 따라 다른 기판에서 성장된 박막의 조밀도 보다 낮아짐을 의미하며 기판의 결정구조에 의한 영향으로 생각된다. 본 연구에 사용된 Si(100) 기판의 결정구조는 입방정계 구조를 가지고 있으며 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 기판은 hexagonal 구조를, glass는 비정질 구조를 가지고 있다. 박막의 초기 성장특성은 기판의 결정구조에 크게 영향 받으며 기판의 결정구조에 따라 성장하는 박막의 미세구조가 달라진다 [5,13]. 이것은 박막이 성장될 때 기판의 결정구조를 따라 성장하기 때문이다. 이러한 이유 때문에 결정구조가 비정질인 glass 기판에서는 매우 불규칙한 성장이 이루어져 박막의 두께가 증가함에 따라 박막의 조밀도가 다른 기판에 성장된 박막들에 비해 떨어지는 것으로 생각된다. 이러한 결과는 Fig. 3에서도 잘 나타난다.

Fig. 3은 RF 파워 80 W에서 30분, 60분 동안 중착된 박

(c) $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ substrateFigure 4. n spectra of Ta_2O_5 films deposited on various substrates during 60 min according to RF power.

막들의 기판의 종류에 따른 굴절률 스펙트럼의 변화를 나타낸 그림이다. Fig. 3의 결과에서 알 수 있듯이 성장시간

Table 4. Analysis results of Ta₂O₅ films deposited at 120 W RF power according to O₂ partial pressure ratio.

Substrates	RF Power (W)	O ₂ Ratio (%)	Deposited Time (min)	Ta ₂ O ₅ Layer Thickness (nm)	Surface Layer	
					Void Ratio (%)	Thickness (nm)
Si(100)	120	0	27	76.9	50	3.6
		5	220	79.8	50	0.1
		10	220	93.7	30	4.0
		15	220	70.2	50	19.9
Glass	120	0	27	71.0	50	7.5
		5	220	88.3	40	5.9
		10	220	95.1	60	5.3
		15	220	78.3	50	8.2
Al ₂ O ₃ (0001)	120	0	27	74.3	40	7.9
		5	220	86.6	30	8.5
		10	220	100.9	30	7.8
		15	220	75.4	30	12.8

이 30분 일 때는 기판에 따른 굴절률의 차이는 매우 작았으나 성장시간이 60분일 때는 전 에너지 영역에 걸쳐 굴절률의 차이가 커졌으며 glass 기판에 성장된 박막의 굴절률이 가장 크게 나타났다. 이러한 결과는 앞서 언급한 바와 같이 박막의 두께가 증가함에 따라 glass 기판에 성장된 박막의 조밀도가 다른 기판에 비해 상대적으로 낮아지기 때문인 것으로 생각된다.

Fig. 4는 다양한 기판에 60분 동안 증착된 박막의 RF 파워에 따른 굴절률 스펙트럼을 나타낸 그림이다. Fig. 4의 결과에 따르면 RF 파워가 증가함에 따라 박막의 굴절률은 전 에너지 영역에 걸쳐 작아졌으며 굴절률의 차이는 Al₂O₃ 기판에 증착된 박막에서 가장 크게 나타났다. RF 파워에 따른 굴절률의 변화는 Si 기판에 증착된 박막의 경우 100 W와 120 W에서는 거의 같았으며 glass와 Al₂O₃ 기판에 증착된 박막에서는 100 W에서 증착된 박막의 굴절률이 가장 크게 나타났고, 80 W에서 증착된 박막의 굴절률은 모든 기판에서 가장 크게 나타났다. 또한 glass 기판에 증착된 박막의 굴절률이 다른 기판에 증착된 박막의 굴절률 보다 모든 파워에서 작게 조사되었으며 분산형태의 변화도 가장 심하게 나타났다. 이러한 결과들을 Table 3과 Fig. 1의 결과와 종합해 보면 박막의 성장시간에 따른 두께 변화가 클수록 박막의 조밀도가 낮아져 이에 따라 굴절률도 작아진 것으로 생각된다.

Table 4는 RF 파워 120 W에서 다양한 산소분압비로 증착된 박막들의 분석결과이다. 표면층의 공극 비율은 glass

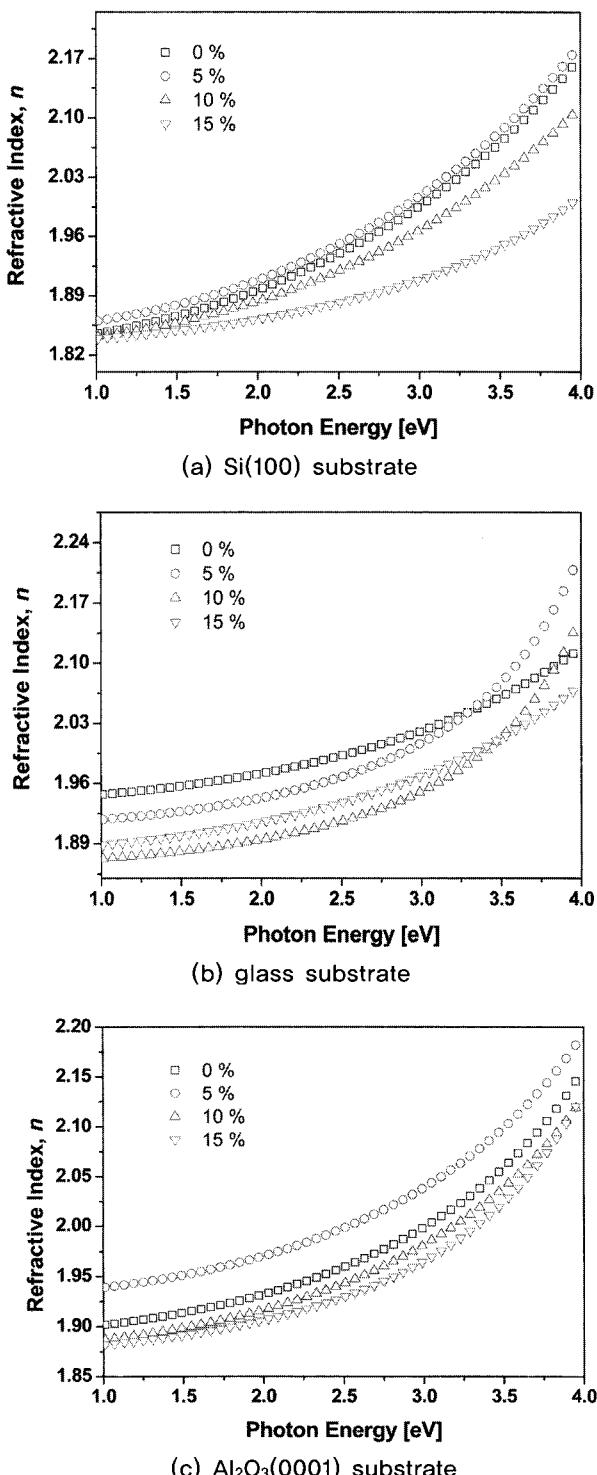


Figure 5. n spectra of Ta₂O₅ films deposited at 120 W RF power according to O₂ partial pressure ratio.

기판에 성장된 박막에서 다른 기판에 비해 다소 높게 나타났으며 표면층의 두께는 모든 기판에서 산소분압비가 15 % 일 때 가장 높게 나타났으며 그 중 Si 기판에 증착된 박막

의 표면층의 두께는 19.9 nm로 가장 크게 조사되었다.

Fig. 5는 RF 파워 120 W에서 증착된 박막의 산소분압비에 따른 굴절률 스펙트럼이다. Fig. 5의 결과에서는 Si, Al₂O₃ 기판에 증착된 박막들의 산소분압비에 따른 굴절률은 산소분압비가 5%일 때 가장 크게 나타났으며 산소분압비가 증가할수록 굴절률은 산소분압비가 0%일 때 보다 작아졌다. 산소분압비가 5%일 때 굴절률이 다른 산소분압비에서 보다 증가한 이유는 5%의 산소분압비에서 증착된 박막이 화학량론적으로 가장 안정하기 때문으로 생각되며 산소분압비가 5% 이상이었을 때는 박막 내에 산소가 과잉되어 굴절률이 감소한 것으로 생각된다. glass 기판에 성장된 박막의 산소분압비에 따른 굴절률의 변화는 산소분압비가 증가함에 따른 일정한 경향은 없었으나 산소분압비가 0% 일 때 보다는 굴절률이 감소하였다. glass 기판에서는 산소분압비에 따른 굴절률 변화에 대한 특성이 다른 기판에 비해 다르게 나타났는데 이러한 특성은 앞서 언급한 바와 같이 비정질인 glass 기판의 결정구조에 의한 무질서한 성장 때문인 것으로 생각된다.

Tauc-Lorentz 분산관계식을 이용한 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수의 타당성을 검증하기 위해 투과율 스펙트럼을 측정하였다. Fig. 6에서 Fig. 8까지는 RF 파워 80, 100, 120 W에서 60분 동안 glass 기판에 증착된 박막들의 분석 및 측정에 대한 투과율 스펙트럼을 300~1000 nm의 파장 영역에 걸쳐 비교한 그림이며 Fig. 9는 RF 파워 120 W에서 5%의 산소분압비로 220분 동안 glass 기판에 증착된 박막의 분석 및 측정에 대한 투과율 스펙트럼을 비교한 것이다. 분석 투과율 스펙트럼은 분광타원계에 의해 분석된 각 층의 두께와 굴절률을 설계프로그램에 반영하여 얻은 투과율 값이며, 측정 스펙트럼은 UV-Vis

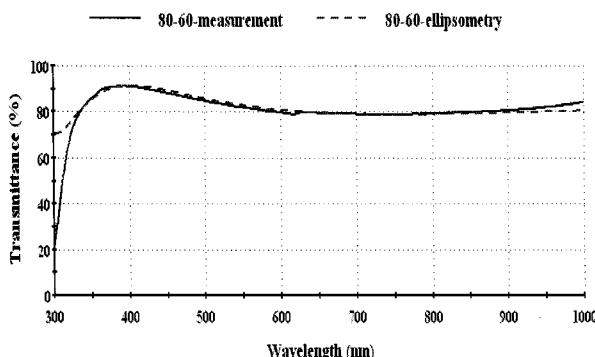


Figure 6. Comparison of transmittance spectra of Ta₂O₅ films deposited on glass substrate (80 W, 60 min).

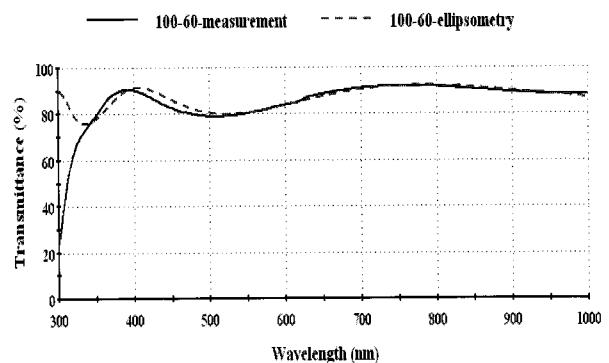


Figure 7. Comparison of transmittance spectra of Ta₂O₅ films deposited on glass substrate(100 W, 60 min).

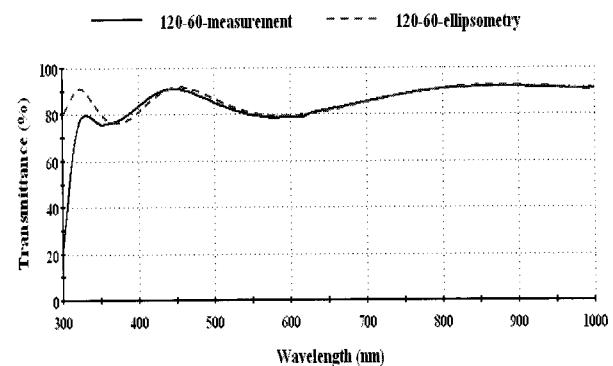


Figure 8. Comparison of transmittance spectra of Ta₂O₅ films deposited on glass substrate(120 W, 60 min).

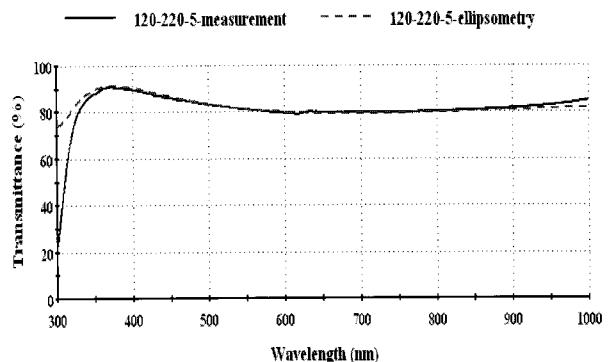


Figure 9. Comparison of transmittance spectra of Ta₂O₅ films deposited on glass substrate(120 W, 220 min, O₂ 5%).

분광광도계에 의해 측정된 값이다. Fig. 6에서 Fig. 9까지의 결과에서와 같이 측정스펙트럼과 분석스펙트럼은 모든 시료에서 좋은 일치를 보여주고 있어 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수가 타당함을 보여주고 있다. 측정스펙트럼과 분석스펙트럼의 차이는 약 330 nm 근처에서

다소 크게 발생했는데 이러한 차이는 glass 기판에 의한 강한 흡수 때문인 것으로 판단된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 RF 마그네트론 스퍼터링 시스템을 이용하여 Ta₂O₅ 박막을 제작하였고, 분광타원법을 이용하여 다양한 제작조건에 따른 박막의 두께 및 광학상수를 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

RF 파워, 산소분압비, 기판의 결정구조에 따른 Ta₂O₅ 박막의 굴절률 스펙트럼의 변화를 분석한 결과 Ta₂O₅ 박막의 굴절률 스펙트럼이 제작 조건에 의한 미세구조 및 원소조성비의 변화에 기인하여 굴절률의 크기와 분산형태가 달라짐을 알 수 있었다. 또한 투과율 스펙트럼의 비교결과 측정 투과율과 분석 투과율이 모든 시료에서 좋은 일치를 보여 타원상수 분석을 통해 얻은 두께와 광학상수가 타당함을 보였다.

감사의 말

이 연구는 한국과학창의재단의 2008 과학고 R&E 프로그램(과제번호 2008-01-024)과 2008년 공주대학교 연구년 교수 연구비에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] E. Atanassova and D. Spassov, *Appl. Surf. Sci.*

135, 71 (1998).

- [2] M. Ohring, *The Materials Science of Thin Films* (Academic Press, 1992).
[3] G. S. Oehrlien, *Thin Solid Films* **156**, 207 (1988).
[4] W. D. Park, D. Y. Keum, K. W. Kim, and K. M. Choi, *J. of the Korean Sensors Society* **1**, 173 (1992).
[5] C. K. Hwangpo, *Thin Film Optics* (Tech-media, 2005).
[6] R. R. Willey, *Practical Design and Production of Optical Thin Films* (Marcel Dekker, 2002).
[7] O. S. Heavens, *Optical Properties of Thin Solid Films* (Dover, 1991).
[8] S. Y. Kim, *Ellipsometry* (Ajou University Press, 2000).
[9] S. T. Lim, M. I. Kang, K. S. Lee, Y. G. Kim, and J. W. Ryu, *J. of the Korean Vacuum Society* **16**, 134 (2007).
[10] H. Fujiwara, *Spectroscopic Ellipsometry* (Wiley, 2007).
[11] D. E. Aspnes and J. B. Theeten, *Phys. Rev. B* **20**, 3292 (1979).
[12] M. I. Kang, M. W. Kim, Y. G. Kim, J. W. Ryu, and H. O. Jang, *J. of the Korean Vacuum Society* **17**, 204 (2008).
[13] H. Shirou, *Thin Film Optics* (Hongik Press, 1984).

Optical Properties of Sputtered Ta₂O₅ Thin Films Using Spectroscopic Ellipsometry

Sun-Hee Kim^a, Eui-Hyun Lee^a, In-Woo Jung^a, Jang-Hoon Hyun^a, Sung-Young Lee^a,
Man-Il Kang^b, and Ji-Wook Ryu^{b*}

^a*Chungnam Science High School, Chungnam 314-920*

^b*Department of Physics, Kongju National University, Kongju 314-701*

(Received February 16, 2009, Revised March 20, 2009, Accepted March 23, 2009)

Ta₂O₅ thin films were deposited by RF magnetron sputtering method under various RF power, substrates and oxygen partial pressure. Elliptic constants were measured by using a phase modulated spectroscopic ellipsometer and analyzed with the Tauc-Lorentz dispersion formula and best fit method in the range of 310~1239 nm. Also, transmittance spectra of the films were measured by UV-Vis spectrophotometer in the range of 300~1000 nm. From these data, thickness of Ta₂O₅ and surface layer were analyzed and changes of magnitude and shape of dispersion of optical constants according to fabricated conditions were measured. Also, to evaluate thickness and optical constants data analyzed by Tauc-Lorentz dispersion formula, the measured and analyzed transmittance spectra were compared. In result of the comparison, two spectra were in good agreement each other. Accordingly, it indicates that our ellipsometric analysis is valid.

Keywords : Ta₂O₅, Spectroscopic ellipsometry, RF magnetron sputtering, Tauc-Lorentz

* [E-mail] jwryu@kongju.ac.kr