

논문 17-10-1

RF 마그네트론 스퍼터링법에 의해 합성된 AlN 박막의 공정조건에 따른 우선 배향성 및 평탄성에 관한 연구

A Study on the Orientation and the Roughness with the Deposition Condition of AlN Thin Films Prepared by RF Magnetron Sputtering Method

이민건¹, 장동훈¹, 강성준², 윤영섭^{1,a}

(Min Geon Lee¹, Dong Hoon Chang¹, Seong Jun Kang², and Yung Sup Yoon^{1,a})

Abstract

We fabricated AlN thin film by using RF magnetron sputtering and studied the structural characteristic of AlN thin film with the change of the deposition conditions such as Ar/N₂ flow ratio, working pressure, and the distance between substrate and target. The orientation and surface roughness of AlN thin film were studied by using XRD and AFM. We can not identify the orientation of the thin film deposited in Ar, while we obtained the (100) orientation of the thin film with the addition of N₂. Especially, the thin film deposited at 18/2 (sccm) of Ar/N₂ flow ratio exhibited to be the most (100) oriented. The (100) orientation of thin film becomes weaker as the working pressure becomes higher. The further distance between substrate and target is stronger the (100) orientation of the thin film, but the (100) orientation becomes weaker and (002) orientation started to appear as the distance is shorter. The surface roughness of the thin film deposited at 500°C in Ar only is 1.1 nm, while very smooth thin film of 0.4~0.6 nm is obtained with the addition of N₂.

Key Words : AlN, RF magnetron sputtering, Dimer, (100) Orientation, Roughness

1. 서 론

AlN (Aluminium nitride) 는 높은 용융점, 높은 열전도도, 높은 온도에서의 열적, 화학적 안정성, 높은 전기저항, 빠른 탄성파의 속도[1,2], 높은 광학적 투과성 등의 우수한 특성을 지니고 있어 최근 많은 관심이 집중되고 있는 기능성 재료 중의 하나이다[3]. 또한, AlN 박막은 Wurtzite 헥사고날

(hexagonal) 형태의 기본 구조를 가지고 있고, 빠른 음향 속도와 압전 특성을 가지고 있어 GHz 범드필터 소자의 압전체로서 주목받고 있다[4,5].

AlN 박막의 제조방법으로는 반응성 스퍼터링 (reactive sputtering) 법[6,7], 화학 기상 증착 (chemical vapour deposition : CVD) 법[8,9] 등이 사용되고 있다. CVD 법은 스퍼터링법 보다 증착속도가 빠르지만 결정성장 온도가 고온이고 증착된 박막의 표면상태가 거칠어 필터 소자의 응용시 문제점이 있고 기판 선택의 폭이 좁은 단점이 있다. 이에 반하여 스퍼터링법은 증착속도가 느리지만 우수한 표면상을 가진 박막과 전기 및 광학적 특성이 우수한 박막제조가 가능하다[7]. 이로 인해 지금 까지 AlN 박막의 증착은 주로 진공 챔버 내에 반응성 기체를 유입하여 스퍼터된 전도성 타겟 물질과 반응성 기체의 화합물을 기판위에 증착시키는

1. 인하대학교 전자공학과
(인천시 남구 용현동 253)

2. 여수대학교 반도체학과

a. Corresponding Author : ysyoon@inha.ac.kr

접수일자 : 2004. 5. 14

1차 심사 : 2004. 6. 14

2차 심사 : 2004. 7. 28

심사완료 : 2004. 8. 20

방법인 반응성 스퍼터링에 의해 이루어지고 있다. AlN 박막이 필터 소자에 응용되기 위해서는 박막의 우선배향성이 매우 중요한 요소이다. AlN 박막의 우선배향성의 차이는 전기기계결합 계수의 차이로 이어져 필터 소자의 특성에 큰 영향을 미치게 된다. (100)과 (002) 배향성은 일반적으로 알려진 AlN 박막의 우선배향성이고, 그 배향성은 증착 조건에 따라 결정되어진다[10]. 일반적으로, 스퍼터링 방법으로 AlN 박막을 증착하면, (002) 배향성을 갖게 된다. 하지만 AlN 박막이 필터 소자로 응용되기 위해서는 (100) 방향으로 배향된 박막이 필요하다. 이는 (100) 배향성을 지닌 박막이 전기적 에너지를 표면탄성파 에너지로 전환하는 능력을 나타내는 전기기계결합 계수가 (002) 배향성을 지닌 박막의 전기기계결합 계수보다 더 크기 때문이다[11]. 스퍼터링 방법으로 증착된 AlN 박막이 (100) 배향성을 가지기 위해서는 Al과 N 원자가 기판에 증착될 때, 서로 충돌하여 Al-N의 dimer 형태로 증착되어야 한다. 이를 위해서는 챔버내에서 Al과 N 원자가 서로 충분히 dimer 형태로 형성되도록, 낮은 에너지 상태인 조건을 만들어 주어야 한다[12]. 그러나, 이러한 조건에서는 챔버내 입자들의 에너지가 무척 작기 때문에 증착률이 현저히 떨어지는 문제점이 발생한다. 그럼에도 불구하고 스퍼터링을 이용해서 (100) 배향성의 AlN 박막을 제조하려는 연구가 진행되는 것은 우수한 표면상태를 지닌 양질의 박막제조가 가능하기 때문이다.

따라서, 본 연구에서는 반응성 RF 마그네트론 스퍼터링을 이용해서 (100) 방향으로 배향된 평탄한 표면을 갖는 고품질의 AlN 박막제조를 위한 증착 조건을 조사하고자 하였다. 가스비, 기판과 타겟 사이의 거리, 진공도를 변화시켜 AlN 박막을 제작하고 XRD와 AFM 등을 통하여 박막의 (100) 배향성과 결정성 등을 연구 분석하였다.

2. 실험

본 실험에서는 넓은 증착 면적과 우수한 배향성을 가진 양질의 막을 얻을 수 있는 반응성 RF 마그네트론 스퍼터링 법을 이용하여 AlN 박막을 증착하였다. 실험에 사용된 장비의 개략적인 구조를 그림 1에 나타내었다. 본 연구에서 사용된 기판은 Si(100)로 박막성장의 기저면인 기판오염은 AlN 박막 성장에 영향을 미칠 수 있으므로, 오염 물질

을 제거하기 위해서 초음파 세척기를 이용하여 아세톤(15분)/알코올(15분)/1차 증류수(10분)/2차 증류수(15분)의 순서로 세척하고 질소를 이용해 건조하여 사용하였다. AlN 박막은 직경 2 inch의 AlN 타겟(순도:99.999%)을 이용하여 조건을 변화시키면서 기초실험을 수행한 후, 양호한 조건인 RF 전력 150W, 기판온도 500°C에서 Ar/N₂ 가스비, 챔버내의 진공도, 기판과 타겟사이의 거리를 변화시켜 증착 조건을 표 1에 나타내었다. 증착 조건을 표 1에 나타내었다. 증착 전 챔버내의 불순물을 최대로 제거하기 위해 챔버의 초기 진공도는 3×10^{-6} Torr를 유지한 후, mass flow controller(MFC)를 이용하여 반응성 가스인 Ar/N₂ 혼합가스를 챔버내로 주입하였다. 타겟표면에 형성된 불순물을 제거하고 플라즈마의 안정을 위해 셔터를 닫은 상태에서 20분간 예비 스퍼터링(pre-sputtering)을 실시한 후, 셔터를 열어 AlN 박막을 증착하였다.

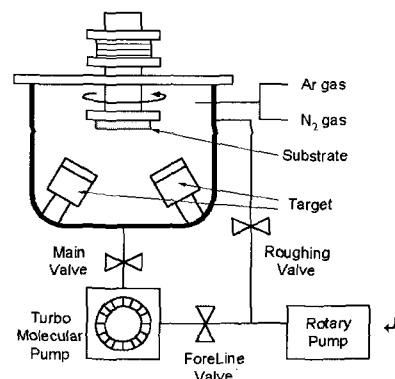


그림 1. RF 마그네트론 스퍼터링 시스템.

Fig. 1. Schematic diagram of RF magnetron sputtering system.

표 1. AlN 박막 증착 조건.

Table 1. Sputtering conditions of AlN thin films.

Deposition parameter	Conditions
RF power	150W
Substrate temperature	500°C
Distance between target and substrate	0.08 ~ 0.12m
Ar/N ₂ flow ratio	20/0 ~ 12/8(sccm)
Working pressure	20 ~ 50mTorr
Base pressure	3×10^{-6} Torr

각 증착조건에서 제작된 AlN 박막의 두께는 STYLUS PROFILER (Dektak' 6M) 을 이용하여 측정하였다. 또, 증착조건에 따른 AlN 박막의 구조적 특성을 분석하기 위해 X-ray diffractometer (PHILIPS PW 3020, Cuka) 를 이용하여 결정성 및 우선배향성을 조사하였다. 이때 X-ray 는 CuK α 선으로 파장은 1.54060 Å 이었으며, 분석조건은 40kV, 30mA 에서 5°/min 의 측정속도였다. AlN 의 표면거칠기는 AFM (Park Science, AP 2000L) 을 이용하여 조사하였다.

3. 결과 및 논의

그림 2 는 Ar/N₂ 가스비에 따른 AlN 박막의 결정 구조를 규명하기 위하여, RF 전력 150 W, 기판온도 500 °C, 진공도 20 mTorr, 기판과 타겟 사이의 거리 100 mm 조건에서 1 시간 동안 증착된 AlN 박막의 XRD 측정 결과를 나타낸 것이다. XRD 결과에서 AlN 박막의 (100) 피크와 Si(100) 기판의 회절 피크 위치가 33° 부근으로 거의 일치하여 혼동을 일으킬 수도 있다. 그러나, 33° 부근의 회절 피크가 Si(100) 피크라면 모든 측정 결과에서 관찰되어야 하나 실험 조건에 따라 회절 피크의 유무가 결정되는 것으로 보아 33° 부근의 회절 피크는 AlN 박막의 (100) 피크임을 확신할 수 있었다.

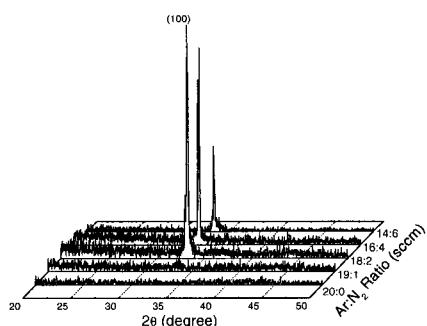


그림 2. Ar/N₂ 가스비에 따른 AlN 박막의 XRD.

Fig. 2. XRD patterns of AlN films as a function of Ar/N₂ flow ratio.

Ar 만을 이용하여 증착한 AlN 박막과 Ar/N₂ 가스비를 19/1 (sccm) 로 하여 증착한 AlN 박막에서 회절 피크가 관찰되지 않는 비정질 박막이 제작되었음을 볼 수 있다. 이온빔 스퍼터링을 이용한

연구에서 임계 에너지 이하를 가지는 N₂ 이온으로 제작된 AlN 박막의 경우, 비정질 AlN 박막이 제작되었다[12]. 이 경우 낮은 N₂ 이온 에너지로 인하여 비정질 박막이 제작된다고 보고 있다. 본 연구에서는 제작 방법이 다르지만, N₂ 가스가 없거나 미미한 조건의 경우 N₂ 가 스퍼터된 AlN 타겟의 분자들과 결합하지 못하거나 반응성 스퍼터링의 정도가 미미하여 비정질 AlN 박막이 형성된 것으로 생각된다. Ar/N₂ 가스비가 18/2 (sccm) 를 넘어서면, AlN 박막의 회절 피크를 관찰할 수 있었다. 회절 피크는 (100) 배향성을 나타내는 33.3° 부근에서 관찰되었다. N₂ 가스 분압비가 증가할수록, 회절 피크의 크기는 점점 감소하는 경향을 나타내었다. 본 연구에서는 Ar/N₂ 가스비가 18/2 (sccm) 일 때, 가장 우수한 결정성을 가짐을 실험을 통해 확인할 수 있었다. Ar/N₂ 가스비에 따라 배향성이 변하는 이유는 타겟 화합물의 구성원소에 따른 스퍼터 효율의 차이에 기인한 박막의 화학양론 변화가 일어나고 그에 따른 결정성 변화가 일어나기 때문인 것으로 사료된다.

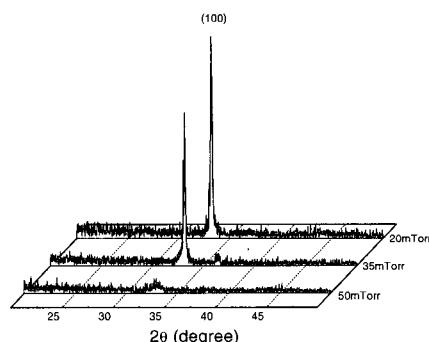


그림 3. 진공도에 따른 AlN 박막의 XRD.

Fig. 3. XRD patterns of AlN films as a function of working pressure.

그림 3은 RF 전력 150 W, 기판온도 500 °C, Ar/N₂ 가스비 18/2 (sccm), 기판과 타겟 사이의 거리 0.1 m 조건에서 진공도를 변화시켜 가면서 증착한 AlN 박막의 XRD 측정 결과를 나타낸 것이다. 통상적인 스퍼터링 공정에서는 수 mTorr에서 공정을 수행하나, 본 연구에서는 수십 mTorr 에서 수행하였는데, Al-N dimer 형성을 위한 환경을 만들기 위해 (100) 배향성을 갖는 박막이 제작될 진공도가 20 mTorr 에서 50 mTorr 로 압력이 증가할수록, AlN 박막의 (100) 배향성은 점차 감소되는 경향을

나타내었다. AlN 박막이 (100) 방향으로 배향성을 갖기 위해서는 Al-N dimer를 형성하는 증착 조건이 필요하다. 여기서 dimer는 스퍼터링된 Al과 N 이온들이 기판에 증착되기 전에 에너지를 잃고 서로 결합하는 형태를 말한다. 단위성장이 Al-N과 같은 dimer 형태가 아니고 Al과 N 같은 원자인 경우 박막의 배향성은 (002)로 형성된다고 알려져 있다[13]. 압력이 큰 경우에는 Al-N dimer 형태가 분리되지 않아 (100) 배향성이 강화되는 반면 압력이 낮은 경우에는 dimer 형태가 분리되어 Al과 N 같은 원자 단위가 되어 (100) 배향성이 약해지게 된다. 그림 3에서 보듯이, 20 mTorr 일 때는 가장 큰 (100) 회절 피크를 나타내었으나, 50 mTorr로 압력이 커질수록 (100) 회절 피크가 약해지는 것을 관찰할 수 있었다. 압력이 높아지게 되면 증착전 이온들의 에너지 손실로 인한 dimer 형성이 용이해질 수 있다고 생각되나 임계점 이상의 압력에서는 스퍼터된 분자들이 이온들에 의해 방해를 받아 충분히 기판에 증착되지 못하여 결정화 특성에도 영향을 받았을 것으로 생각된다. 반대로, 본 실험에서는 조사하지 않았지만 20 mTorr 이하의 충분히 낮은 압력하에서는 증착종 이온들의 에너지 손실이 적어 Al과 N 원자 또는 일부 AlN 분자형태로 기판에 증착되어 (100) 배향성이 크지 않았을 것으로 추측할 수 있다.

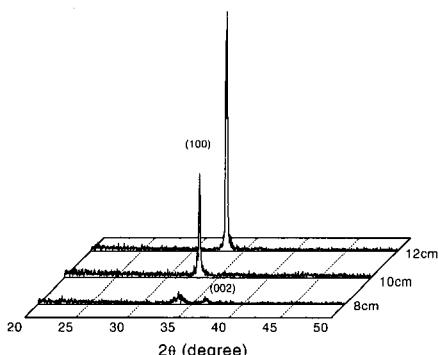


그림 4. 기판-타겟 사이의 거리 따른 AlN 박막의 XRD.

Fig. 4. XRD patterns of AlN films as a function of distance between target and substrate.

그림 4는 RF 전력 150W, 기판온도 500 °C, Ar/N₂ 가스비 18/2 (sccm), 진공도 20 mTorr 조건에서 기판과 타겟 사이의 거리를 변화시켜 증착한 AlN 박막의 XRD 측정 결과를 나타낸 것이다. 기

판과 타겟 사이의 거리를 0.12 m로 했을 때, 가장 큰 (100) 회절 피크를 관찰할 수 있었고, 거리가 줄어들수록 (100) 회절 피크는 약해지는 경향이 관찰되었다. 특히, 0.08 m 거리에서는 (002) 방향의 회절 피크도 약하게 관찰되었다. 이를 통해서 기판과 타겟 사이의 거리가 줄어들수록 (100) 배향성이 약해지고, (002) 방향의 배향성이 나타난다는 것을 알 수 있었다.

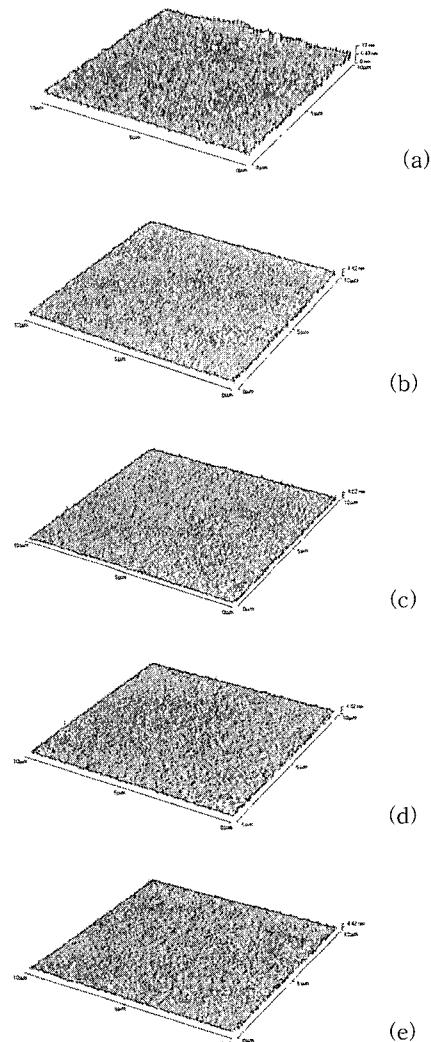


그림 5. Ar/N₂ (sccm) 가스비에 따른 AlN 박막의 AFM 형상 : (a) 20/0, (b) 18/2, (c) 16/4, (d) 14/6, (e) 12/8.

Fig. 5. AFM images of AlN films as a function of Ar/N₂ flow ratio (sccm) : (a) 20/0, (b) 18/2, (c) 16/4, (d) 14/6, (e) 12/8

증착과정에서 기판과 타겟 사이의 거리가 가까워 질수록 Al과 N 원자는 기판에 직접 증착되고, (002) 방향으로 배향된 박막이 성장된다. 반면에, 기판과 타겟 사이의 거리가 멀어질수록 기판과 타겟 사이의 공간에서 에너지를 잃은 Al과 N 원자의 충돌에 의해 Al-N dimer가 형성되어 기판에 증착되므로 (100) 배향성을 나타내게 된다. 이와 유사하게, M. Ishihara 등도 기판-타겟 거리에 따른 AlN 박막의 (100) 배향성을 mean free path와 관련하여 보고한 바 있다[13].

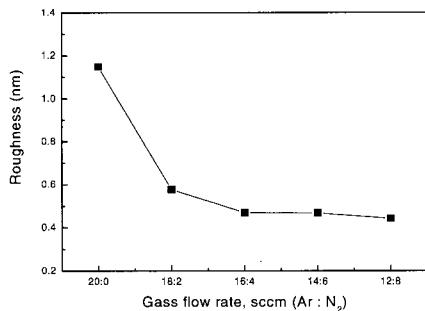


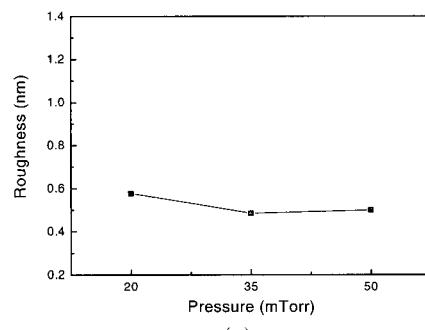
그림 6. Ar/N₂ 가스비에 따른 AlN 박막의 표면 거칠기.

Fig. 6. Roughness of AlN films as a function of Ar/N₂ flow ratio.

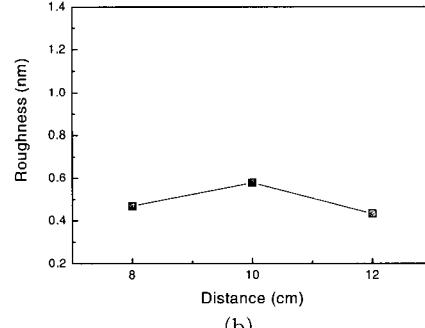
그림 5 와 그림 6 은 RF 전력 150 W, 기판온도 500 °C, 진공도 20 mTorr 및 기판과 타겟 사이의 거리가 0.1 m 인 조건에서 Ar/N₂ 가스비에 따른 AlN 박막의 표면형상 및 표면 거칠기 변화를 AFM 으로 분석한 결과를 나타낸 것이다. 박막의 표면 거칠기가 커지면, SAW 및 필터 응용시 신호 왜곡 및 탄성파의 산란으로 인한 필터의 삽입손실을 증가시키는 것으로 알려져 있다. Ar 만으로 증착한 박막의 표면 거칠기는 1.1 nm 정도로 조사되었다. 하지만 N₂ 가스 분압비가 증가하면서, 표면 거칠기가 향상되어 약 0.4~0.6 nm 정도로 매우 매끈한 표면형상이 이루어짐을 알 수 있었다. N₂ 가스 분압비가 증가하면서, 표면 거칠기가 향상되는 것을 볼 수 있는데, 이는 다른 2원 금속 화합물의 스퍼터링의 경우에서처럼, Ar 만으로 스퍼터링한 경우 금속 성분이 과다 포함된 박막이 형성되어 표면 거칠기가 열악해지고, 그 후 반응성 가스가 유입되면서 표면 거칠기가 좋아진다는 보고와 유사하다[14,15].

그림 7(a)와 (b)는 RF 전력 150 W, 기판온도 500 °C, Ar/N₂ 가스비 18/2 (sccm) 에서 챔버 내

의 진공도와 기판과 타겟 사이의 거리에 따른 박막의 표면 거칠기 변화를 AFM 으로 분석한 결과이다. 진공도와 기판과 타겟 사이의 거리에 따른 표면 거칠기는 근소한 차이는 있으나 약 0.4~0.6 nm 정도를 나타내었다. AFM 분석 결과를 통하여 500 °C 의 고온에서 증착한 AlN 박막은 매우 평坦한 표면형상 및 표면 거칠기를 나타내고 있음을 확인할 수 있었다. 이상의 결과들로부터, AlN 박막의 표면 거칠기는 N₂ 가스 분압비에 가장 큰 영향을 받음을 알 수 있었다.



(a)



(b)

그림 7. 진공도 (a) 와 기판-타겟 거리 (b) 에 따른 AlN 박막의 표면거칠기.

Fig. 7. Surface roughness of AlN films as a function of (a) operating pressure and (b) distance between target and substrate.

4. 결 론

본 연구에서는 RF 마그네트론 스퍼터링을 이용하여 Ar/N₂ 가스비, 챔버내의 진공도, 기판과 타겟 사이의 거리등의 증착조건을 변화시키면서 AlN 박막의 (100) 배향성과 그 구조적 특성을 분석하였다. 스퍼터링 공정시 Ar 만으로 증착한 AlN 박막

에서는 배향성을 확인할 수 없었지만, N₂ 가스가 유입되면서 (100) 배향성을 지닌 AlN 박막을 얻을 수 있었다. 특히, Ar/N₂ 의 가스비가 18/2 (sccm) 일 때 가장 우수한 배향성을 나타내었다. 그러나, N₂ 가스 분압비가 증가할수록 (100) 배향성은 감소하였다. 챔버내의 진공도 변화에 따른 AlN 박막의 배향성은 20 mTorr 일 때 가장 좋은 (100) 회절 피크를 관찰할 수 있었던 반면에 진공도가 50 mTorr 까지 낮아질수록 (100) 배향성은 점차 나빠짐을 확인할 수 있었다. 또한, 기판과 타겟 사이의 거리 변화에 따른 배향성은 120 mm에서 가장 좋은 (100) 배향성을 보였고, 기판과 타겟 사이의 거리가 가까워질수록 (100) 배향성은 감소하였으며 80 mm에서는 (002) 배향성이 나타남을 관찰할 수 있었다. N₂ 가스 분압비에 따른 기판온도 500°C로 증착한 AlN 박막의 표면 거칠기는 Ar 만으로 증착한 경우 1.1 nm 정도를 나타냈으나, N₂ 가스 분압비가 증가되면서 표면 거칠기는 향상되어 0.4~0.6 nm 정도로 나타났다.

이상의 결과로부터 본 연구에서는 Ar/N₂ 의 가스비가 18/2 (sccm) 일 때 가장 우수한 (100) 배향성을 가진 AlN 박막을 얻을 수 있었고, 진공도가 높고 기판과 타겟 사이의 거리가 멀어질수록 더욱 우수한 (100) 배향성의 박막을 얻을 수 있음을 확인하였다.

참고 문헌

- [1] J. K. Liu, K. M. Lakin, and K. L. Wang, "Growth morphology and surface acoustic wave measurements of AlN films on sapphire", *J. Appl. Phys.*, Vol. 46, No. 9, p. 3703, 1975.
- [2] L. G. Pearce, R. L. Gunshor, and R. F. Pierret, "Aluminum nitride on silicon surface acoustic wave devices", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 39, No. 11, p. 878, 1981.
- [3] Y. Watanabe, Y. Nakamura, S. Hirayama, and Y. Naota, "Characterization of aluminum nitride thin films", *Ceramic International*, Vol. 22, p. 509, 1996.
- [4] H. P. Laebel, M. Klee, C. Metzmacher, W. Braud, R. Milsom, and P. Lok, "Piezoelectric thin AlN films for bulk acoustic wave (BAW) resonators", *Materials Science and Engineering*, Vol. B80, p. 1, 2002.
- [5] E. J. Bienk, H. Jensen, G. N. Pedersen, and S. Sorensen, "Effect of reactive gas mass flow on the composition and structure of AlN films deposited by reactive sputtering", *Thin Solid Films*, Vol. 230, p. 121, 1993.
- [6] V. I. Dimitrova, D. I. Munova, and D. A. Dechev, "Study of reactive DC magnetron sputtering deposition of AlN thin films", *Vacuum*, Vol. 49, No. 3, p. 193, 1998.
- [7] B. N. Hwang, C. S. Chen, H. Y. Lu, and T. C. Hsu, "Growth mechanism of reactively sputtered aluminium nitride thin films", *Materials Science and Engineering*, Vol. A325, p. 380, 2002.
- [8] R. G. Gordon and U. Riaz, "Chemical vapor deposition of aluminium nitride thin films", *J. Mater. Res.*, Vol. 7, No. 7, p. 1679, 1992.
- [9] F. Hasegawa, T. Takahashi, K. Kubo, and Y. Nannichi, "Plasma CVD of amorphous AlN from metalorganic Al source and properties of the deposited films", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 26, No. 9, p. 1555, 1987.
- [10] H. C. Lee, G. H. Kim, S. K. Hong, K. Y. Lee, Y. J. Yong, C. H. Chun, and J. Y. Lee, "Influence of sputtering pressure on the microstructure evolution of AlN thin films prepared by reactive sputtering", *Thin Solid Films*, Vol. 261, p. 148, 1995.
- [11] R. Rodriguez-Clemen, B. Aspar, N. Azema, B. Armas, C. Combescure, J. Durand and A. Figueras, "Morphological properties of chemical vapour deposited AlN films", *J. Cryst. Growth.*, Vol. 133, p. 59, 1993.
- [12] 이재빈, 주한용, 이용의, 김형준, "단일 이온빔 스퍼터링법을 이용한 AlN 박막의 증착", *요업 학회지*, 34권, 2호, p. 209, 1997.
- [13] M. Ishihara, S. J. Li, H. Yumoto, K. Akashi, and Y. Ide, "Control of preferential orientation of AlN films prepared by the reactive sputtering method", *Thin Solid Films*, Vol. 316, p. 152, 1998.
- [14] C. R. Aita, R. J. Lad, and T. C. Tisone, "The effect of RF power on sputtered zinc oxide", *J. Appl. Phys.*, Vol. 51, No. 12, p. 5405, 1980.
- [15] 정성훈, 김영호, 문동찬, 김선태, "고주파 때려 내기법에 의한 질화알루미늄 박막의 제작과 특성", *전기전자재료학회논문지*, 10권, 7호, p. 706, 1997.