

**Metal-insulator-transition 특성을 나타내는 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 박막의 증착**

이장우, 박익현, 정지원\*  
 인하대학교 화학공학과  
 (cwchung@inha.ac.kr\*)

**Formation of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films with metal-insulator-transition property**

Jang Woo Lee, Ik Hyun Park, Chee Won Chung\*  
 Department of Chemical Engineering, Inha University  
 (cwchung@inha.ac.kr\*)

**서론**

1950년대부터 metal insulator transition (MIT) 특성을 보이는 물질에 대한 연구가 끊임없이 이루어지고 있다. MIT 특징은 특정한 조건에서 물질의 성질이 insulator에서 metal로 전이 되는 것을 뜻하며, vanadium oxide (VO<sub>x</sub>), niobium oxide (NbO<sub>x</sub>), 그리고 tantalum oxide 등에서 나타난다[1]. 이러한 물질 가운데 NbO<sub>x</sub>는 MIT 특성을 나타내는 대표적인 물질로서 높은 유전상수와 굴절율의 특성 때문에 트랜지스터의 gate insulator, capacitor, optical coating, 그리고 optical interference filter 등에 적용되기도 하며[2, 3], 인가되는 전기에 따라 색이 변하는 electrochromic 특성을 이용한 optical switching device에 적용하기도 한다[4]. NbO<sub>x</sub>는 약 70 °C 이하에서 MIT 특성을 보이는 VO<sub>x</sub>와는 달리 약 130 °C 이상의 높은 온도에서도 그 특성을 보인다[1]. 이러한 이유 때문에 NbO<sub>x</sub>는 memory 소자의 크기를 최소화하는데 있어서 한계를 보이고 있는 현 시점에서 한계를 극복하기 위한 대체 물질로서 각광받고 있다.

본 연구에서는 niobium pentoxide (Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) 박막의 MIT 특성의 확인과 개선을 위하여 radio-frequency (RF) magnetron sputtering 방법을 이용하여 NbO<sub>x</sub> 박막을 증착 하였고, quartz furnace 내에서의 열처리 과정을 수행하여 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> phase를 형성하고자 하였다. 형성된 박막의 구조적 특성과 전기적 특성을 관찰함으로써 MIT 특성을 보이는 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 박막 증착의 최적 조건과 개선 방향을 찾고자 하였다.

**실험**

직경 2 inch와 두께 1/4 inch의 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ceramic target과 chamber내부로 도입되는 Ar과 O<sub>2</sub> 가스를 이용한 RF magnetron sputtering 방법으로 NbO<sub>x</sub> 박막이 증착 되었다. 초기 진공은

mechanical pump와 turbo molecular pump에 의해서  $2 \times 10^{-6}$  Torr까지 형성되었다. 증착의 주요 변수로서 RF power, 공정 압력, 그리고 산소 가스의 농도를 설정하였으며 각각의 조건 변화에 따라서 증착 속도를 관찰하였다. 증착 시 사용되는 기판은 증착된  $\text{NbO}_x$  박막의 전기적 특성을 조사하기 위해서 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si를 사용하였으며, 균일한 증착을 위해서 13 rpm의 속도로 기판이 회전되었다. 타겟과 기판의 거리는 7 cm로 고정되었으며,  $\text{NbO}_x$  박막의 증착 전에 타겟 표면의 오염을 제거하기 위해서 pre-sputtering이 10분간 진행되었다.  $\text{NbO}_x$  박막의 실제 증착에서 RF power를 300, 400, 500 W로 변화시켰으며 공정 압력을 5, 7, 10, 12, 15 mTorr 그리고 산소 농도를 0, 2, 4, 5, 6, 8 %로 변화시켰다. 증착된 박막은 furnace에서 1 hr동안 Ar 가스의 분위기하에서 열처리되었다. Dektak surface profilometer를 이용하여 증착된 박막의 두께를 측정하였고, x-ray diffraction (XRD)을 이용하여 열처리 전과 후의  $\text{NbO}_x$  박막의 phase 변화를 관찰하였다. 또한 field emission scanning electron microscope (FESEM)을 이용하여 열처리 전과 후의 표면과 단면 모습을 관찰함으로써 박막의 구조적 특징을 조사하였다. 그리고 current-voltage (I-V) measurement를 이용하여  $\text{NbO}_x$  박막의 전기적 특성을 관찰하였다.

## 결과 및 토론

본 실험에서 증착의 주요 변수로서 RF power, 공정 압력 그리고 산소 농도가 선택되었다. Figure 1은 선택된 주요 변수에 대한 증착 속도 그래프이다. Figure 1(a)에서 산소농도가 0 %에서 2 %로 증가할 때 증착속도는 큰 폭으로 감소하지만 2 % 이상의 산소농도 변화에서는 감소 폭이 크지 않음을 볼 수 있으며 Figure 1(b)에서 RF power가 증가할수록 증착 속도는 점진적으로 증가하는 경향을 나타낸다. 또한 Figure 1(c)에서 공정압력의 변화에 따른 증착속도의 그래프를 볼 수 있다. 공정압력이 10 mTorr까지 증가할 때 증착속도는 증가하고 10 mTorr 이상의 압력에서는 오히려 감소하는 경향을 나타낸다. 이것은 공정압력이 10 mTorr 이상이 되면 Ar의 양이온에 의한 sputtering 효과보다 chamber 내에 가스가 너무 많이 존재하게 되어 mean free path가 감소하는 원인이 증착에 더욱 큰 영향을 미치

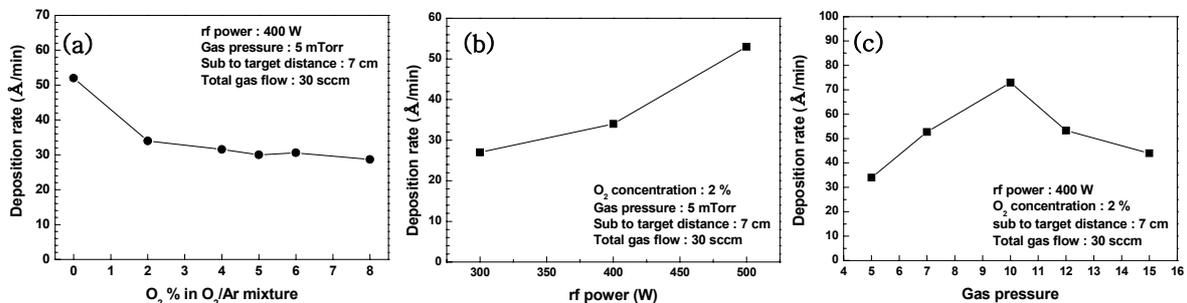


Figure 1. Deposition rates of  $\text{NbO}_x$  thin films as a function of (a)  $\text{O}_2$  concentration, (b) RF power, and (c) gas pressure.

기 때문이라고 판단된다.

Figure 2는 증착된  $\text{NbO}_x$  박막의 열처리 전과 후의 XRD 그래프이다.  $\text{NbO}_x$  박막의 증착은 가장 중요한 변수인 산소 농도의 변화에 따라 200 nm의 두께를 목표로 실시하였고, 박막의 증착 후 furnace에서 1 hr 동안 Ar 가스 분위기하에서 열처리가 진행되었다. Figure 2(a)에서 증착된  $\text{NbO}_x$  박막의 열처리 전의 XRD 분석결과를 볼 수 있다. 0 % 산소농도의

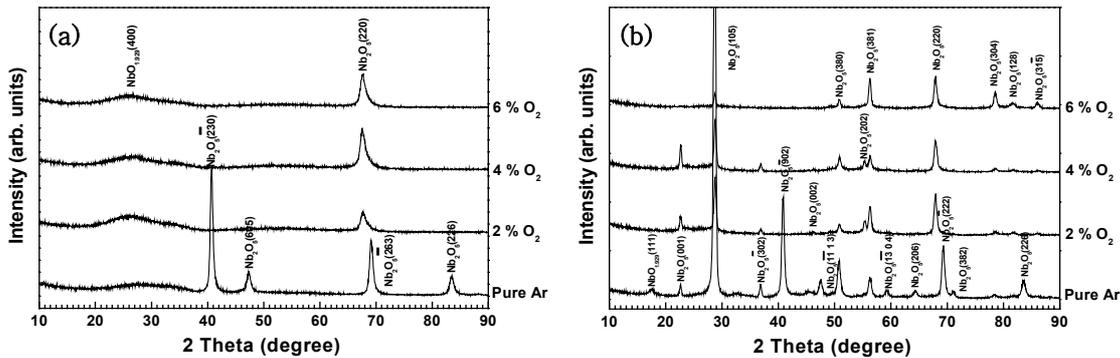


Figure 2. XRD patterns of deposited  $\text{NbO}_x$  thin films (a) before annealing and (b) after annealing for 1 hr at 600 °C in Ar ambient.

증착 조건에서는  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 의 phase가 관찰되며, 2 % 이상의 산소농도에서는  $\text{NbO}_2$ 와  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  phase가 혼합되어 있음을 관찰 할 수 있다. 열처리 후의 XRD 분석인 Figure 2(b)에서는 0 % 산소농도에서  $\text{NbO}_2$ 와  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 의 phase가 혼합되어 있고, 2 % 이상의 증착조건에서 열처리 전과 달리  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  peak만이 관찰되었다. 이러한 분석 결과는 열처리에 의해서 2 % 이상의 산소 농도 조건에서 증착된  $\text{NbO}_x$  박막이 여러 가지 phase 중에서 가장 안정한 결합인  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  phase로 형성되는 것을 보여준다.

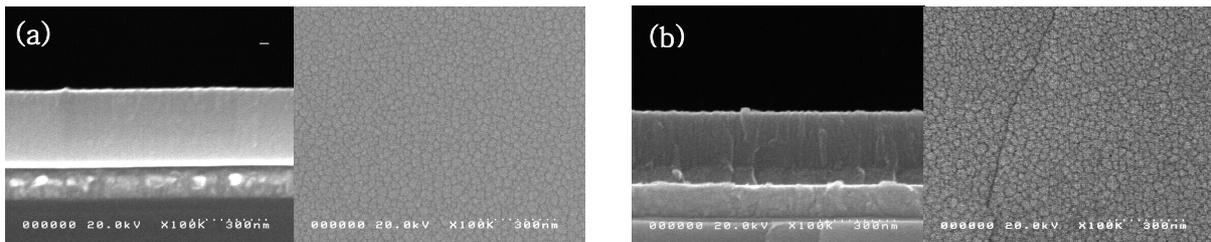


Figure 3. FESEM photographs of  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  thin film deposited using 4 %  $\text{O}_2$  in  $\text{O}_2/\text{Ar}$  mixture; RF power 400 W; gas pressure 5 mTorr (a) before annealing and (b) after annealing.

증착된  $\text{NbO}_x$  박막을 열처리 한 후, 표면과 단면의 모습을 관찰함으로써 박막의 구조적 특징을 관찰하고자 하였다. Figure 3에서 FESEM image를 통해서 표면과 단면의 변화를 볼 수 있다. 열처리 전(Figure 3(a))과 비교하여 열처리 후(Figure 3(b))의 단면에서 column과 유사한 결정화된 모습을 관찰 할 수 있었으며, 표면 모습에서는 큰 변화 없이 열처리 전과 유사하게 작은 크기의 grain들이 고르게 분포되어 있는 것은 관찰할 수 있었다.

Figure 4는 증착과 열처리를 이용하여 형성된 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 박막에 대한 전기적 특성의 측정 결과를 보여준다. 전기적 특성의 측정을 위해 기판에 사용된 Pt가 하부 전극으로 사용되었고, 박막의 증착과 열처리를 수행한 후 lift-off와 Pt의 direct current magnetron sputtering 증착 방법을 이용하여 상부 전극을 형성시켰다. 30×30 μm<sup>2</sup>과 50×50 μm<sup>2</sup>의 상부 전극에서 I-V 분석을 한 결과 약 3.2 V의 voltage를 가했을 때 insulator에서 metal로 성질이 전이 되는 것이 관찰되었다.

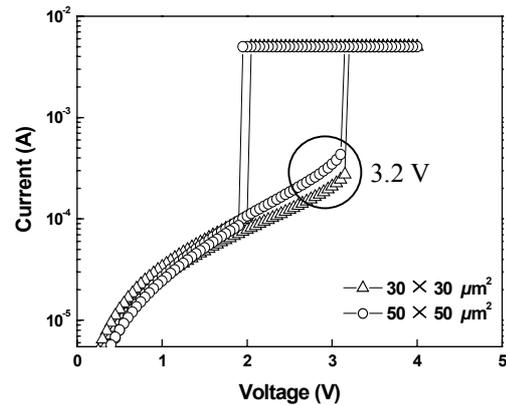


Figure 4. I-V measurement of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> film deposited using 4 % O<sub>2</sub> in O<sub>2</sub>/Ar mixture; RF power 400 W; gas pressure 5 mTorr and annealed at 600 °C for 1 hr in Ar ambient.

### 결론

RF magnetron sputtering 방법과 열처리를 이용하여 NbO<sub>x</sub> 박막의 phase 변화와 이에 따른 전기적 특성을 관찰하기 위한 연구가 진행되었다. RF power, 공정압력, 그리고 산소농도가 증착의 주요 변수로 설정되었다. RF power가 증가할수록 증착 속도는 증가하였으나 산소농도가 증가할수록 증착 속도는 감소하는 경향을 나타내었으며, 공정압력의 경우에는 증착 속도가 증가하다가 다시 감소하는 경향을 나타냈다. 열처리 후의 NbO<sub>x</sub> 박막에 대한 XRD 분석을 이용하여 2 % 이상의 산소농도에서 증착된 NbO<sub>x</sub> 박막은 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 안정한 박막이 형성되었음을 알 수 있었고, FESEM 관찰을 통해서 박막의 표면과 단면의 변화도 관찰할 수 있었다. 또한 I-V 분석을 이용하여 형성된 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 박막이 특정한 voltage에서 MIT 특성을 나타내는 것을 확인할 수 있었다.

### 참고문헌

1. F. A. Chudnovskii, L. L. Odynets, A. L. Pergament, and G. B. Stefanovich, "Electroforming and Switching in Oxides of Transition Metals: The Role of Metal-Insulator Transition in the Switching Mechanism", *J. Solid State Chem.*, 122, 95-96(1996).
2. C. C. Lee, C. L. Tien, J. C. Hsu, "Internal stress and optical properties of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin film deposited by ion-beam sputtering", *Appl. Opt.*, 41, 2043-2047(2002).
3. K. Kukli, M. Ritala, and M. Leskela, "Development of Dielectric Properties of Niobium Oxide, Tantalum Oxide, and Aluminum Oxide Based Nanolayered Materials", *J. Electrochem.Soc.*, 148(2), F35-F41(2001).
4. T. Maruyama and S. Arai, "Electrochromic properties of niobium oxide thin films prepared by radio-frequency magnetron sputtering method", *Appl. Phys. Lett.*, 63(7), 869-870(1993).