

대향타겟스퍼터링장치에의해 증착된 ZnO 박막의 결정학적 특성

금민중*, 성하윤*, 공석현*, 손인환**, 김경환*
 * 경원대학교 전기전자공학부, ** 신성대학 전기과

Crystallographic characteristics of ZnO thin films prepared by Facing Targets Sputtering system

M.J.Keum*, H.Y.Sung*, S.H.Kong*, I.H.Son**, K.H.Kim*
 *Kyungwon Uni, **Shinsung college

Abstract - We prepared ZnO thin film with Facing Targets Sputtering system that can deposit thin film in plasma-free situation and change the deposition condition in wide range. And prepared thin film's c-axis orientation and grain size were analyzed by XRD(x-ray diffractometer). In the results, we suggest that FTS system is very suitable for preparing high quality ZnO thin film with good c-axis orientation.

1. 서 론

ZnO 박막은 대칭 육방정계(hexagonal), wurtzite-type crystal로써 결정 구조에서의 이방성, 비화학양론적 결합구조, 높은 굴절율과 압전 결합계수, 다양한 전기적 광학적 그리고 탄성파적 성질 때문에 현재 여러 응용 분야에서 각광을 받고 있는 재료중의 하나이다. 따라서 이러한 특성을 갖는 ZnO 박막을 이용하여 광전 소자나 평판표시 소자에 대한 투명 전도성 박막, 계기용 패널에 대한 정전 방지 코팅, 압전 특성을 이용한 음향 광학소자(acousto-optical device), SAW filter등의 소자에 사용되고 있다.¹⁻³⁾

ZnO 박막은 기판에 수직인 결정학적 c-축으로 우선 방위 현상(preferred orientation)을 나타내며 압전 특성을 이용하여 응용을 할 경우 높은 압전 결합계수와 비저항이 요구된다. 그러나 이 c-축 배향성은 ZnO 막의 형성 조건에 의해 큰 차이가 있다. 특히 스퍼터법을 이용한 ZnO 박막을 제작하는 경우 기판 온도, 막 축적속도, 기판의 배치 및 스퍼터 가스압 등의 스퍼터 조건이 c-축 배향성에 영향을 미치지만 타겟에서 방출된 높은 에너지를 갖는 부의 산소 이온에 기인한 기판 충돌로 ZnO 막의 c-축 배향성을 열화 시키는 최대 원인이라고 생각된다. 때문에 우수한 특성을 갖는 ZnO 박막을 제작하기 위한 스퍼터법의 개발과 최적의 증착 조건을 확립하여 ZnO 박막을 제작할 필요가 있다. 본 연구에서는 낮은 산소 가스압력에서의 막 증착과 막 손상의 주된 원인이었던 높은 에너지를 갖는 입자들의 기판 충돌을 억제한 대향타겟스퍼터링법을 이용하여 ZnO 박막을 제작하였다.

2. 실험 방법

2.1 실험순서 및 측정방법

스퍼터링을 이용한 박막의 제작에는 증착 조건에 따라 막의 특성이 매우 민감하게 변화한다. 따라서 증착조건에 따른 특성변화를 알아보기 위해서는 각각의 변수에 대해서 독립적이어야 할 필요가 있다. 그러나, 막 증착시 발생하는 높은 에너지를 갖는 입자들의 기판 충돌로 인해 박막 증착거동에 대한 거시적인 고찰이 어렵다는 문제점이 있다. 때문에 이러한 고에너지 입자들의 기판 충돌을 최대한 억제시켜 막을 제작할 필요가 있다. 따라서 본 실험에서는 고에너지 입자들의 기판충돌을 최대한 억제한 상태에서 ZnO 박막의 제작을 위하여 Fig.1에 나타낸 대향타겟스퍼터링 장치를 이용하였다. 두 개의

타겟은 서로 마주보게 배치되어 있으며 타겟면에 수직으로 자계가 분포하도록 영구자석이 배치되어있다. 또한 하나의 타겟은 맞은편 타겟에서 방출된 γ -전자의 반사 전극이 되어 타겟 사이를 왕복 운동하게된다. 따라서 γ -전자에 의한 분위기 가스의 이온화율이 높아 낮은 가스 압력에서도 안정적인 방전이 가능하다. 한편, 기판의 배치는 Fig.2에 나타난 것 처럼 플라즈마로부터 이격되어 있는 상태 즉 플라즈마-프리 상태에 있기 때문에 스퍼터링시에 발생하는 높은 에너지를 갖는 입자들의 기판 충돌을 최대한 억제할 수가 있다는 특징을 가지고 있다.⁴⁾

본 실험에서는 가스 압력 0.5~3mTorr, 기판 온도 $R \cdot T \sim 350^{\circ}C$, sputtering current 0.1~0.8A로 변화시켜 가며 막을 제작하였다.

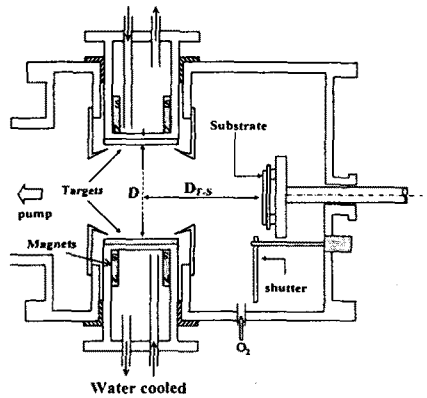


Fig.1 Schematic diagram of the Facing Targets Sputtering system

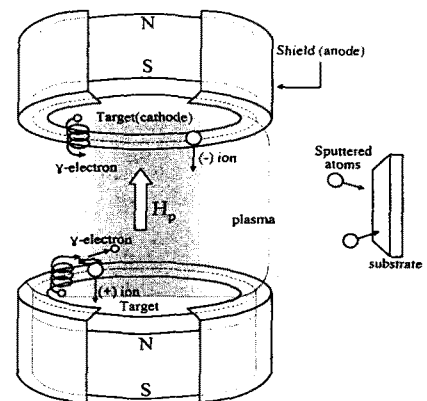


Fig.2 Schematic diagram of the Facing Targets Sputtering system

slide glass를 기판으로 하여 증류수로 5분간 2회, IPA로 10분간 2회 초음파 세척을 하였다. 다음 표.1은

은 실험에서의 증착조건을 나타낸 것이다. 증착한 ZnO 박막의 c-축 우선배향성을 알아보기 위해 X-선 회절 분석기(X-ray diffractometer)를 사용하여 rocking curve를 통해서 우선배향성의 정도를 관찰하였다. $\theta/2\theta$ scan에서 관찰되어지는 ZnO 박막의 (002)면 회절 peak가 나타나는 2θ 위치에 X-선 검출기를 고정시키고 시료를 θ scan하면 가우시안 분포에 가까운 X-선 강도의 분포를 얻을 수 있는데, 이때 측정된 결과를 가우시안 분포로 근사하여 표준편차(σ)를 구하는 방법이다. 이 표준편차의 값이 작을수록 특정 결정면이 기판에 평행한 즉, 기판면에 특정 결정축의 수직인 정도가 우수함을 나타낸다. 또한 증착된 막의 두께는 Tencor의 Alpha-step 200을 사용하여 측정하였다.

Table.1 Sputtering condition of ZnO Thin Films

Deposition parameter	conditions
Targets	Zn(4N,99.99%)
Substrate	slide glass
target-target distance	100mm
targets-substrate distance	100mm
base pressure	8×10^{-7} mTorr
discharge pressure	0.5~3mTorr
substrate temperature	R · T~400°C
confining flux	200 [Oe]
Sputtering current	0.1~0.8[A]

2.2 제작된 ZnO 박막의 결정학적 특성 분석

Fig.3에는 기판 온도 300°C에서 sputtering current에 따른 증착속도를 나타낸 것으로서 sputtering current의 증가에 따라 증착속도 또한 선형적으로 증가됨을 알 수 있다. 순 산소 가스를 이용한 ZnO 박막의 제조에 있어서 최적의 증착속도는 다소 차이가 있지만 대략 40~60Å 정도이다.

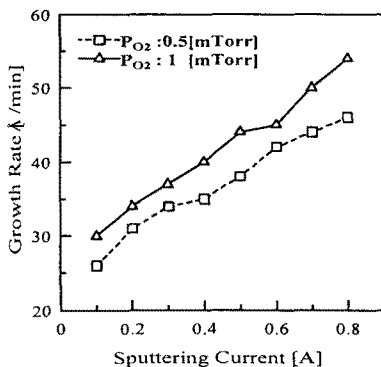


Fig.3 Variation of growth rate of the ZnO films with an applied current

인가전력에 따른 결정성이나 c-축 우선 배향성의 변화는 주로 인가전력이 낮을 경우 스퍼터링되어 기판에 도달하는 입자들의 운동 에너지(kinetic energy)가 낮아서 기판에 도달하는 기상입자들의 표면 이동도가 보장되지 않아 비정질 혹은 결정성이 좋지 않은 박막이 형성된다. 인가전력을 증가시킬 경우 원자들의 표면 이동도를 충분히 증가시켜 우수한 결정질 박막을 증착할 수 있게 된다. 그러나 인가 전력의 증가는 증착속도의 과도한 증

가로 인하여 표면 원자들이 기판에 도달하여 결정성을 저하시키게된다. Fig.4는 산소 가스압력 0.5mTorr, 막 두께(δ) 3000Å일 때 기판온도를 변화시켜가며 제작한 ZnO 박막의 XRD 결과를 나타낸 것이다. 300(°C)에서 증착된 ZnO 박막의 (002) peak가 가장 우세하게 나타났다.

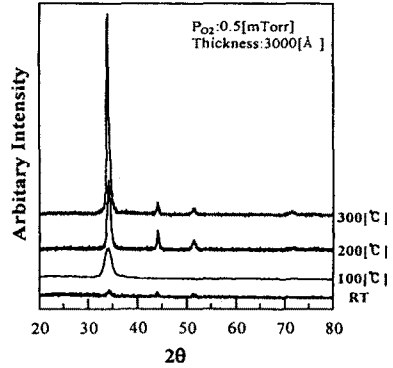


Fig.4 Variation of XRD pattern of the ZnO thin films with a substrate temperature

Fig.5는 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 $\Delta\theta_{50}$ 을 나타낸 것이다. 그림에서 나타난 것처럼 기판 온도의 증가로 인해 스퍼터된 원자가 에너지적으로 안정한 위치를 충분히 찾아 갈 수 있기 때문에 결정성이 양호해지며 증착된 박막의 우선배향성 또한 기판 온도의 증가에 따라 증가하는 경향을 나타낸다.

본 실험에서는 300°C에서 증착된 막의 c-축 우선 배향성이 가장 우수했다.

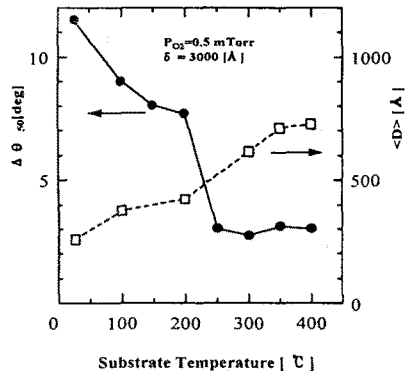


Fig.5 Variation of $\Delta\theta_{50}$ and grain size with a substrate temperature

Fig.6은 막 두께(δ)에 따른 $\Delta\theta_{50}$ 에 따른 결정성 및 구조적 특성을 나타내고 있다. 그림에 나타난 것처럼 막 두께(δ)가 증가 할수록 c-축 배향성이 양호해짐을 알 수 있다. 이는 두께가 증가함에 따라 결정입이 크게 성장하여 결정성이 양호해지기 때문으로 사료된다. 그러나 막 두께가 더욱 증가할수록($\delta > 3000$ Å) $\Delta\theta_{50}$ 는 증가하는 경향이 있는데 이는 막 두께가 수 μ m이상일 때 두드

러지게 나타나는 현상으로서 두께가 증가함에 따라 증착 초기 c-축이 기판에 수직인 방향으로 존재하는 결정립들의 성장이 우세하다가 증착이 계속 될수록 높은 에너지를

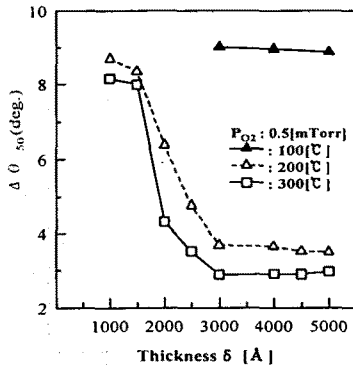


Fig.6 Variation of $\Delta\theta_{50}$ with an Film thickness

갖는 입자들의 계속된 기판 충돌에 의해 이러한 성장은 억제되고 c-축이 기판에 평행하지 않은 결정입들의 성장이 지배적으로 나타나기 때문이다. 그러나 본 실험에서 사용된 대향타겟식 스퍼터법의 경우에는 기판 충돌에 관여하는 높은 에너지를 갖는 입자들의 수가 극히 적기 때문에 결정성을 저하시키는 독립적인 인자로 보기에 어렵다. 오히려 두께 증가와 함께 비교적 높은 기판온도와 증착시간이 증가할 수록 스퍼터된 원자들이 re-sputter 되는 확률이 커지기 때문에 결정성이 저하되는 것으로 보는 것이 설득력이 있다.

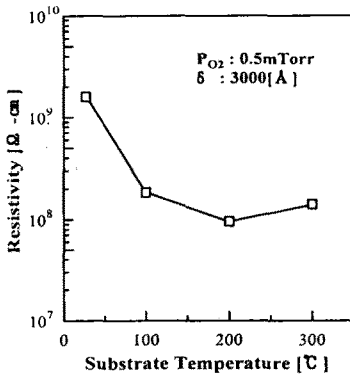


Fig.7 Variation of resistivity with an substrate temperature

Fig.7에 나타난 것처럼 기판을 가열하지 않았을 때 가장 높은 비저항을 갖고 기판온도가 증가함에 따라 비저항은 감소함을 나타내고 있다. 이는 기판에 도달하는 산소입자가 기판 온도에 의해 re-sputter되어 박막내에 포함되는 산소 함량이 감소하기 때문으로 사료된다. 따라서 c-축 배향성의 변화는 높은 에너지를 갖는 입자들의 충돌만에 의한 감소라기보다는 막 두께 증가와 기판 온도 300°C 이상의 조건에서 감소한다고 사료된다.

3. 결 론

대향타겟식 스퍼터법을 이용하여 높은 에너지를 갖는 입자들의 기판 충돌을 최대한 억제한 상태에서 막을 증착하였다. 스퍼터링 공정 변수 변화에 따른 다결정 ZnO 박막의 증착 거동을 살펴본 결과 Zn 타겟을 이용하여 ZnO 박막을 증착 시 산소 가스압력 1mTorr 이하, 기판 온도 300°C, 두께 3000Å인 경우 c-축 우선배향성이 가장 우수하게 나타났다. 또한 높은 에너지를 갖는 입자들의 충돌을 최대한 억제할 수 있기 때문에 넓은 범위의 가스압력에서도 우수한 c-축 우선배향성을 나타내었으며 기판 온도의 증가에 따라 $\Delta\theta_{50}$ 이 감소하는데 이는 기판온도에 의해 스퍼터된 입자들이 기판상에서 에너지적으로 안정한 위치를 충분히 찾아 갈 수 있을 만큼의 에너지를 갖기 때문이다. 그러나 300°C 이상의 기판 온도에서는 증착된 입자들의 재충발로 인해 증착율의 감소와 결정성이 악화됨을 알 수 있었다.

본 실험에서는 막 두께 3000Å, 기판 온도 300°C인 경우의 박막이 3° 미만의 가장 우수한 $\Delta\theta_{50}$ 을 나타내었다. 이는 두께의 증가에 따라 증착되는 박막의 구조적 입자의 재배열에 의한 것으로 생각된다.

[참 고 문 헌]

- [1] Y.Igasaki and H.Saito, J.Appl.Phys.,70,3613 (1991)
- [2] F.S.Hickernell, J.Appl.Phys.,44,1061 (1973)
- [3] W.H.G.Horsthuis, Thin Solid Films, 137,185 (1986)
- [4] Y.Hoshi, M.Naoe and S.Yamanaka, "High Rate Deposition of Iron Films by Sputtering from Two Facing Targets", J.J.Apply Phys.,Vol.16, No.9, pp.1715~1716, 1977