

기판 변화에 따른 ZnO 박막의 광학특성 연구

Comparison of the optical properties of ZnO thin films grown on various substrates by pulsed laser deposition

배상혁¹, 이상렬²

(Sang Hyuck Bae, Sang Yeol Lee)

Abstract

Various substrates were compared for the investigation of the optical properties of ZnO thin films. ZnO thin films have been deposited on (100) p-type silicon substrates and (001) sapphire substrates by pulsed laser deposition technique using a Nd:YAG laser with the wavelength of 355 nm. Oxygen and nitrogen gases were used as ambient gases. Substrate temperatures were varied in the range of 200°C to 600°C at a fixed ambient gas pressure of 350 mTorr. ZnO films have been deposited on various substrates, such as Si and sapphire wafers. We have investigated substrate effect on the optical and structural properties of ZnO thin films using X-ray diffraction (XRD) and photoluminescence (PL).

Key Words(중요용어) : ZnO, PLD, Optical property, Substrate temperature, Stoichiometry

1. 서론

ZnO는 II-VI족 직접형 반도체로 3.3 eV 정도의 큰 에너지밴드갭을 갖고 있으므로 UV 레이저다이오드 등과 같은 발광소자재료로 이용가능성이 매우 큰 물질이다. ZnO는 발광소자로 전세계적으로 큰 관심을 끌고 있는 GaN와 매우 비슷한 특징을 갖고 있다. GaN는 III-V족 반도체로 직접형반도체이기 때문에 적절한 도핑을 통해 가시광선영역의 발광소자로 이용되고 있으며, ZnO 역시 직접형 반도체로 UV 발광과 green, yellow등의 발광을 한다 [1,2,3]. 기존의 연구를 통해서 ZnO 박막은 SAW필터나 도파관등으로 이용되어 왔다 [4,5]. ZnO 박막의 발광특성을 주목적으로 하여 제작한 실험들이 많이 있었는데, 제작

방법에는 MBE (molecular beam epitaxy), rf (radio frequency) sputtering, CVD (chemical vapor deposition)등이 있다 [6,7,8]. 본 연구에서는 펄스레이저 증착법을 사용하여 ZnO 박막을 증착하였다. 펄스 레이저 증착법은 레이저의 고에너지(~ 100 eV)를 사용하여 다른 증착 방법보다 다소 낮은 온도에서 박막을 증착시킬수 있는 잇점을 갖고 있으며, 높은 분위기 산소압을 사용할수 있으며, 보다 좋은 박막 특성을 얻을 수 있다고 알려져 있다 [9]. ZnO는 quartz와 coming glass, Si등의 기판위에 증착시키는 경우가 일반적이다 [10]. 본 연구에서는 p형 Si과 사파이어를 기판으로 사용하였다. 실험을 통해 얻은 박막의 XRD 결과 분석을 통해 증착된 모든 박막이 c-축성장을 하였음을 확인하였으며, 대부분의 박막들이 에피택셜하게 성장하였다. 본 논문에서는 사용된 기판의 종류에 따라 증착된 ZnO 박막의 구조적, 발광 특성을 연구하였으며 좋은 발광특성을 나타낼 때의 기판 및 증착조건을 찾아내었다.

¹ 연세대학교 전기컴퓨터공학과 석사과정 3학기
(서울시 신촌동 연세대학교,
Fax: 02-364-9770

E-mail : jerome@yonsei.ac.kr)

² 연세대학교 전기컴퓨터공학과 부교수
E-mail : sylee@yonsei.ac.kr)

2. 본 론

2.1 실험 방법

ZnO 박막을 증착하기 위해서 최근 신물질 연구에 각광받고 있는 펄스 레이저 증착법을 사용하였다 [11]. 본 실험에 사용된 시스템에서 챔버는 터보펌프를 사용하여 초기진공을 10^{-6} Torr까지 만들었으며, $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$ 크기를 갖는 (001) 배향의 사파이어 (Al_2O_3) 기판과 (100) 배향을 갖는 p형의 Si를 기판으로 사용하였다. 히터는 900°C 가열이 가능한 저항가열 히터를 사용하였다. 타겟으로는 세라믹 ZnO (직경 1 인치, 순도 99.999%)을 사용하였다. Nd:YAG 펄스 레이저는 355 nm의 파장을 갖으며 반복을 5 Hz로 타겟에 조사되었다. 증착동안에 레이저 펄스가 연속적으로 타겟의 새로운 면에 조사되도록 하기 위하여 타겟 홀더를 분당 2회전하게 세팅하였다 [11]. 기판은 아세톤과 메탄올로 5분간 초음파세척기로 세척한후 사용하였다. 위에 설명한 증착 시스템에서 산소압을 350 mTorr로 고정시킨 상태에서 기판 온도를 200°C 에서 700°C 까지 변화시켜 주면서 실험을 하여, 일정한 분위기 산소압에서의 최적의 증착 조건을 찾아내었다. 증착된 박막의 구조적 특성은 XRD를 사용하여 분석하였으며, 박막의 광학특성 분석을 위해서 실온에서 351 nm의 파장을 갖으며 100 mW의 출력을 갖는 Ar ion laser를 사용하여 상온에서 PL(PhotoLuminescence)을 측정하였다.

2.2 실험결과 및 토론

2.2.1 구조적 특성

ZnO박막을 사파이어와 실리콘기판에 증착시킨후 ZnO 박막의 구조적 특성을 XRD를 통해 분석하였다. XRD측정 결과는 그림 1에 나타나있다. ZnO 박막을 사파이어기판에 증착시킬 경우 에피택셜한 성장을 나타내는 것으로 알려져 있으며, 실리콘, 석영, corning glass등이 기판으로 사용된다 [9]. 본 실험에서 박막은 분위기를 350 mTorr로 고정시킨 상태에서 기판온도 400°C 에서 700°C 로 변화시켜 가며 증착하였다. 증착된 박막에서는 42.6° 근처의 (006)의 기판의 회절피크와 34.5° 근처의 ZnO (002)의 회절 피크만이 관찰되는 것을 알 수 있다. 박막에서 (002)의 ZnO회절 피크만이 관찰되는 것을 통해 ZnO박막이 c축으로 우선배향된 것을 알 수 있다. 증착시의 기판온도를 증가시킴에 따라 표 1에 나타나는 것과 같이 사파이어 위에 증착된 박막에서 (002) ZnO 피크의 반가폭의 감소를 통해 나타는 바와 같이 박막의 결정성이 향상됨을 알 수 있다. 펄스 레이저 증착

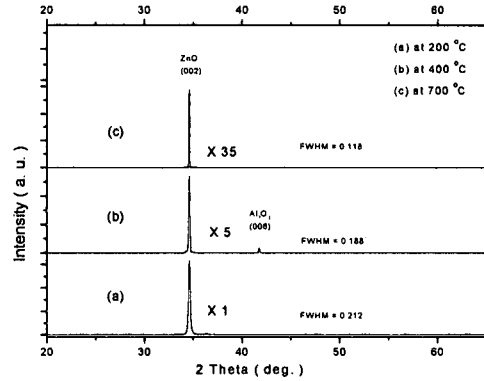


그림 1. 산소압 350 mTorr, 기판온도 (a) 200°C , (b) 400°C , (c) 700°C 의 XRD결과

법에서의 증착시의 기판온도를 증가시킴에 따라 열에너지의 공급이 커지고 이에 따라 보다 큰 결정이 형성되는 것을 알 수 있다. 같은 증착조건에서 실리콘 기판과 사파이어 기판위에 증착된 기판의 결정성을 비교해 볼 때 사파이어 기판위에 증착된 ZnO 박막의 결정성이 뛰어난을 알 수 있으며, 이를 통해 증착된 박막이 보다 많은 결함을 포함하고 있다는 것을 알 수 있다.

증착온도 \ 기판	200°C	400°C	500°C	600°C
(001) 사파이어	0.212	0.188	0.118	0.118
(100) p-형 실리콘	0.282	0.282	0.259	0.259

표 1 기판온도와 종류에 따른 (002) ZnO 피크의 FWHM

2.2.2 광학적 특성

산소압을 350 mTorr에서 고정시킨 상태에서 기판의 온도를 400°C , 500°C 에서 각각 실리콘과 사파이어 기판위에 증착시킨 ZnO 박막의 발광특성이 그림 2에 나타나 있다. UV PL 특성을 볼 때 사파이어 기판위에 증착된 박막의 특성과 사파이어 기판위에 증착된 박막의 UV 피크의 강도가 크게 달라지는 것을 알 수 있다. 사파이어 기판위에 증착된 박막의 UV 피크는 매우 강하며 가시광선 영역의 발광은 거의 나타나지 않았다. 실리콘 기판위에 증착된 박막의

PL 특성을 통해 실리콘 위에 증착된 ZnO 박막은 매우 많은 점결함을 포함하고 있는 것을 알 수 있으며, 이는 가시광선영역에서의 발광을 통해

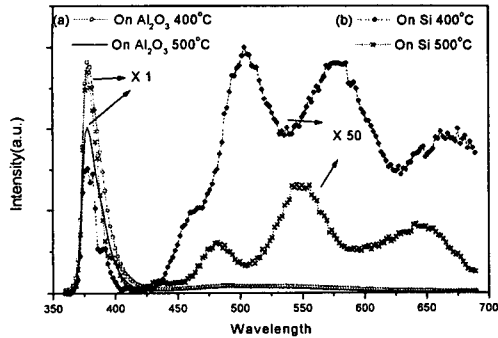


그림 2. (a) 사파이어 기판과 (b) 실리콘 기판위에 증착시킨 ZnO 박막의 PL특성

알 수 있다. ZnO 박막에서의 가시광선 영역의 발광은 이미 박막의 점결함과 관련되어 있는 것으로 알려져 있으며, 점결함에는 산소공핍과 아연과잉으로 알려져 있다. 실리콘 기판위에 증착된 ZnO 박막은 매우 많은 점결함을 갖고 있는데 이는 박막과 기판 사이의 매우 큰 격자상수값의 차이에 의해 생성되는 격자의 불완전성에 기인하는 박막의 결함에 의한 것으로 사료된다. 또한 증착후 상온으로 냉각과정시 박막과 기판사이의 열팽창계수의 차이에 의해 박막에 가해지는 압력이 또한 그 원인이 될 수 있다 [12].

3. 결론

펄스 레이저 증착법을 사용하여 사파이어와 실리콘 기판위에 ZnO 박막을 증착시켰다. 증착된 모든 박막은 XRD결과를 통해 c-축 성장하였다. 400°C의 기판온도와 350 mTorr의 산소압에서 사파이어 기판위에 증착된 ZnO 박막에서 실리콘에 증착된 박막보다 높은 UV 발광특성과 낮은 결함을 갖는 박막이 성장하였다. 높은 UV 발광 특성을 위해서는 사파이어 기판이 사용되어야 할 것이다.

감사의 글

이 논문은 2000년도 두뇌한국21사업 핵심분야에 의하여 지원되었음.

참고 문헌

[1] Z. K. Tang, G. K. L. Wong, and P. Yu, Appl.

Phys. Lett., Vol. 72, No. 25, pp. 3270-3272, 1998

[2] S.A. Studenikin, Nickolay Golego, and Michael Cocivera, J. Appl. Phys., Vol. 84, No. 4, pp. 2287-2294, 1998

[3] 배상혁, 이상렬, "분위기 산소압변화에 따른 ZnO 박막의 UV 발광 특성분석", 대한전기학회 하계학술대회, E권, 1523-1525, 1999.

[4] K. L. Chopra, S. Major and K. K. Pandya, "Transparent conductors - a status reviews", Thin Solid Films, Vol. 102, pp. 1-46 1983

[5] K. Tabuchi, W. W. Wenas, A. Yamada, "Optimization of ZnO films for amorphous silicon solar cells", Jpn J. Appl. Phys., Vol. 32, Part 1, No. 9A, pp. 3764-3769, 1993

[6] Y. Chen, D.M. Bagnall, Z. Zhu, T. Sekiuchi, K. Park, K. Hiraga, T. Yao, S. Koyama, M.Y. Shen, T. Goto, "Growth of ZnO single crystal thin films on c-plane(0001) sapphire by plasma enhanced molecular beam epitaxy", Journal of Crystal Growth, 181, 165, 1997.

[7] K.B. Sundaram, A. Khan, "Characterization and optimization of zinc oxide films by r.f. magnetron sputtering" Thin Solid Films, 295, 87, 1997.

[8] B.M. Atev, A.M. Bagamadova, V.V. Mamedov "On exciton luminescence of ZnO/Al2O3 epitaxial thin films", Thin Solid films, 283, 5, 1996.

[9] 심경석, 이상렬, "레이저 증착변수에 의한 다이아몬드상 카본박막 특성 변화", 대한전기학회논문지, Vol. 48, No.5, 344-348, 1999.

[10] S. H. Bae, S. Y. Lee, B. J. Jin, S. Im, Applied Surface Science, 154-155, 2000, p. 458.

[11] Y.S. Jeong, S.Y. Lee, H.K. Jang, I.S. Yang, S.H. Moon, and B.D. Oh, "Surface modification of laser ablated YBCO target" Applied Surface Science, vol.109, 424-427, 1997.

[12] Simon L. King, J.G.E. Gardeniers, Ian W. Boyd, "Pulsed-laser deposited ZnO for device applications", Applied Surface Science 96-98, 811, 1996.