

막 두께에 따른 ZnO:Al 투명 전도막의 전기적, 광학적 특성

양진석*, 박원효*, 김용진*, 성하윤*, 금민종*, 손인환**, 신성권***, 김경환
 *경원대학교 전기전자공학과, **신성대학 전기과, ***동해대학교 정보통신공학과

A Study on the Electrical and Optical Properties of Transparent Conductive ZnO:Al Films on Variation of Film Thickness

J.S.Yang*, W.H.Park*, Y.J.Kim*, H.Y.Seong*, M.J.Keum*, I.H.Son**, S.K.Shin***, K.H.Kim*
 *Kyungwon Univ. **Shinsung College ***Tonghae Univ.

Abstract - ZnO:Al transparent conductive thin films were prepared by facing targets sputtering system with a DC power supply using ZnO target containing 2wt% of Al₂O₃ and Zn metal target. Sputtering was carried out at substrate temperature of R.T. and 200°C with a DC current of 0.6A, O₂ flow rate of 0.1~0.5 and thickness 300~900nm. ZnO:Al films showed a resistivity as low as 10⁻⁴Ω·cm and a transmittance above 85 % at wavelength 300 and 800nm.

1. 서 론

ZnO(Zinc Oxide)는 대칭육방정계(hexagonal)의 wurzite 결정구조를 가지는 II-VI족 화합물 n-type반도체로서 결정구조에서의 이방성, 비화학양론적 결함구조, 높은 꿀절률과 압전 결합계수, 다양한 전기적, 광학적 그리고 탄성파적 성질 때문에 현재 여러 응용분야에서 각광받고 있는 재료중의 하나이다[1]. 이러한 특성을 이용해 표면 탄성파소자, 디스플레이용 투명 전도성 박막, 태양전지용 투명 전극, IR 반사코팅 등 넓은 분야에서 응용되고 있다. 또한 Zn이 풍부하기 때문에 상대적으로 고가의 indium을 사용하는 ITO(Indium Tin Oxide) 박막보다 ZnO 박막의 제조단가가 상대적으로 저렴한 특징도 가지고 있다[2]. ZnO-based 투명 전도막을 제작하는 방법에는 CVD법[3] 진공증착법[4], 스퍼터링법[5] 등이 있으며, 주로 dopant로서 Al이 첨가된 세라믹 타겟을 사용하여 스퍼터링법으로 ZnO 투명 전도막을 제작하고 있다. ZnO 투명 전도막의 경우 투입전력, 기판온도, 분위기 가스 압력, 산소 분압비, 타겟간 거리, 박막의 두께 등의 증착조건에 의해 결정학적, 전기적, 광학적 특성이 달라지게 된다. 그러므로 결정학적으로 양호하며 전기적, 광학적 특성이 우수한 ZnO 투명 전도막을 제작하기 위해서는 최적의 증착조건을 확립할 필요가 있다[6]. 따라서 본 연구에서는 증착시 낮은 온도와 스퍼터 가스압력에서도 안정적인 방전이 가능한 대향타겟식스퍼터법[7]을 이용하여 박막의 두께가 ZnO투명 전도막의 결정학적, 전기적, 광학적 특성에 주는 영향을 연구하였다.

2. 실험방법

본 실험에서 FTS(Facing Targets System)장치를 이용하여 ZnO:Al 박막을 제작하였다. 대향타겟식 스퍼터링장치는 타겟 뒷면에 영구자석이 장착되어 타겟 표면에 수직으로 자제가 분포된다. 따라서 타겟 사이에 형성되는 플라즈마내의 γ-전자를 구속하게 되며, 구속된 γ-전자는 반사전극 역할을 하는 맞은 편 타겟으로 인해 타겟 사이를 왕복 운동하게 된다. 때문에 γ-전자의 이동거리가 기존의 스퍼터링법 보다 길어 분위기 가스의 이온화율이 높고 고밀도의 플라즈마를 형성하므로 높은 증착율과 0.1mTorr의 낮은 가스압에서도 안정적인 방

전을 유지할 수 있다.

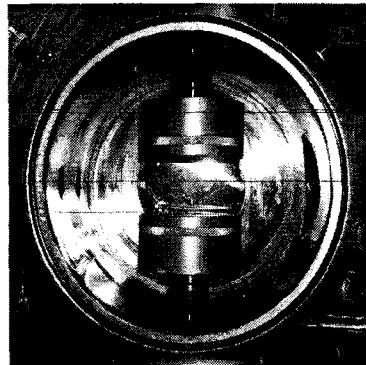


그림 1. 대향타겟식 스퍼터링장치

본 실험에서는 직경 100mm인 Zn(4N)금속 타겟을 상부에, ZnO:Al(2wt%)세라믹 타겟을 하부에 장착하였다. 이때 타겟간 거리는 100mm, 타겟간 중심축과 기판의 이격거리 100mm로 고정하였다. 스퍼터링 가스로는 아르곤과 산소의 혼합 가스를 사용하였으며 기판온도 R.T.에서 산소 가스 유량비(O₂/O₂+Ar)를 0.1~0.5로 변화시켰고 기판온도 200°C에서는 산소 가스 유량비를 0.3으로 고정하였다. 막 두께 변화에 따른 ZnO:Al 박막의 특성변화를 조사하기 위해 기판온도 200°C에서 박막의 두께를 300, 500, 700, 900nm로 변화시켰다. 실험조건은 표 1에 나타내었다. 각 증착조건에서 제작된 ZnO:Al 박막의 두께는 a-Step(Tencor)로 측정하였으며, 비저항은 Four-point Probe (Changmin), 박막의 결정학적 특성은 X-ray Diffractometer (Rigaku), 광학적 특성은 UV/VIS Spectrometer(HP)로 분석하였다.

표 1. 스퍼터링 조건

| Deposition parameter | Condition |
|---|--------------------------|
| Targets | Zn(4N) ZnO:Al(2wt%) |
| Substrate | slide glass |
| target-target distance | 100mm |
| target-substrate distance | 100mm |
| Base pressure | 2×10 ⁻³ mTorr |
| Working gas pressure | 1mTorr |
| O ₂ flow rate O ₂ /(O ₂ +Ar) | 0.1~0.5 |
| Substrate temperature | R.T. 200°C |
| Sputtering current | 0.6A |

3. 실험결과 및 검토

3.1 산소 가스 유량비에 따른 ZnO:Al 박막의 특성
 증착변수에 따른 결정학적, 광학적, 전기적 특성을 우선적으로 검토하여 증착변수를 고정시키고, 태양전지와 평판포시오자 등에 응용하기 위하여 먼저 산소 가스 유량비에 따른 ZnO:Al 박막을 제작하였다. 그림 2는 기판온도 R.T.에서 산소가스 유량비 0.1~0.5에서 제작한 ZnO:Al 박막의 XRD pattern이다. 산소 가스 유량비 0.3에서 제작된 ZnO:Al 박막은 다른 산소 가스 유량비에서 제작된 ZnO:Al 박막의 (002)면 intensity가 약하거나 peak가 나타나지 않는 것과는 달리, (002)면으로 결정 성장이 이루어졌음을 확인할 수 있다.

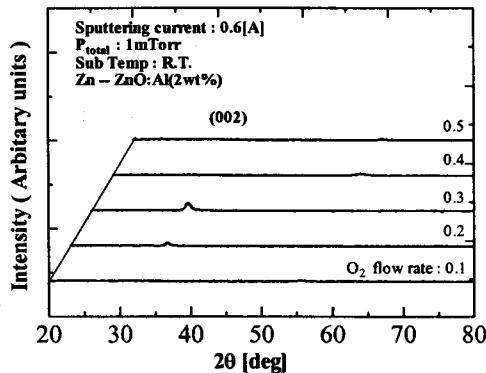


그림 2. 산소 가스 유량비에 따른 ZnO:Al 박막의 XRD patterns

3.2 기판온도에 따른 ZnO:Al 박막의 특성

그림 3은 산소 가스 유량비 0.3일 때 기판온도 R.T.와 200°C에서 제작한 ZnO:Al 박막의 XRD pattern이다. 그림 2에서 확인할 수 있는 바와 같이 기판온도를 R.T.에서 200°C로 증가시킴에 따라 박막의 결정성이 양호해짐을 알 수 있다. 이것은 기판온도가 200°C일 경우 기판 표면 원자의 이동도가 증가하여 입자들의 (002)면 충진밀도가 높아져 결정학적 특성이 개선된 것이라 사료된다.

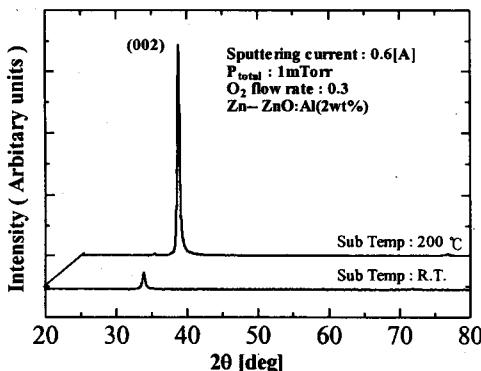


그림 3. 기판 온도에 따른 ZnO:Al 박막의 XRD patterns

그림 4는 기판온도 증가에 따른 투과율 변화를 나타낸 것이다. 기판온도 200°C로 증가시켰을 경우, 기판온도 R.T.에서 제작된 ZnO:Al 박막의 투과율과 큰 변화는 관찰되지 않았다. 제작된 ZnO:Al 박막은 가시광 영역

에서 80%이상의 투과율을 가졌으며, 전기적 특성인 비저항값도 R.T.와 200°C에서 산소 가스 유량비 0.3에서 $<10^4 \Omega \cdot \text{cm}$ 이하로 유사한 값을 나타냈다.

기판온도 변화에 따른 상기의 결과들을 토대로 본 연구에서는 투명 전극에 적용하기 위하여 박막의 결정학적, 광학적, 전기적 특성이 가장 양호한 조건인 기판온도 200°C, 투입전류 0.6A와 산소 가스 유량비 0.3에서 막두께 변화에 따른 ZnO:Al 박막의 특성을 조사하였다.

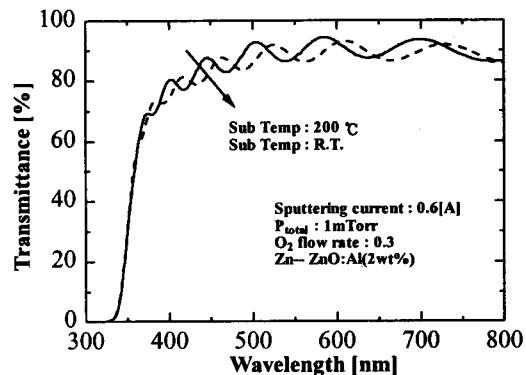


그림 4. 기판 온도에 따른 ZnO:Al 박막의 투과율

3.3 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 결정학적 특성

그림 5는 기판온도 200°C, 가스압력 1mTorr, 투입전류 0.6A, 산소 가스 유량비 0.3에서 제작된 ZnO:Al 박막의 두께 변화에 따른 XRD pattern이다. 막 두께 증가에 따라 XRD intensity가 증가함을 확인할 수 있다. 이것은 ZnO:Al 박막의 성장의 경우 (002)면으로의 성장이 우세하며, 기판에 수평한 방향으로 존재하는 c면이 기판에 수직하게 빠른 속도로 성장하기 때문에 결정학적으로 ZnO:Al 박막의 (002) 우선 배향성이 두께가 두꺼워질수록 증가되는 것으로 사료된다. ZnO:Al 박막의 두께가 900nm일 때 결정입경 크기는 약 33.5nm, FWHM(Full Width at Half Maximum)은 0.259였다.

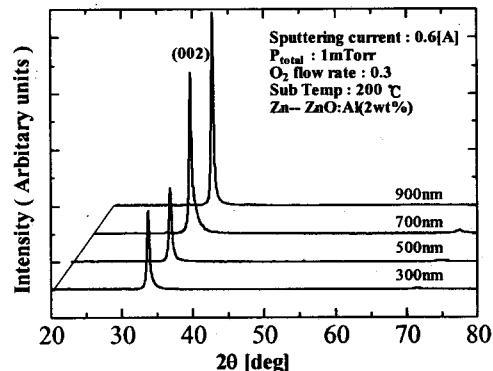


그림 5. 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 XRD patterns

3.4 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 전기적 특성

그림 6은 기판온도 200°C, 가스압력 1mTorr, 투입전류 0.6A, 산소 가스 유량비 0.3에서 제작된 ZnO:Al 박막의 두께 변화에 따른 박막의 비저항을 나타낸 것이다. 막 두께가 증가할수록 ZnO:Al 박막의 비저항값이 감소하는 경향을 보이고 있으며, 이러한 전기적 특성의

변화는 두께의 증가에 따라 막 내의 캐리어 농도 증가에 의하여 비저항값이 감소하는 것으로 사료된다.

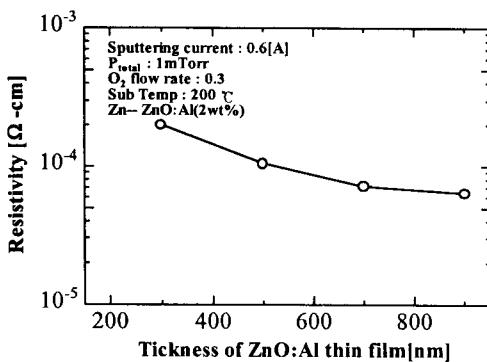


그림 6. 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 비저항

3.5 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 광학적 특성

그림 7은 ZnO:Al 박막의 막 두께에 따른 광투과율을 UV/VIS Spectrometer(wavelength 300~800nm)로 측정한 것이다. 그림 6에서 확인할 수 있는 바와 같이 투과율은 막 두께의 증가에 따라 감소하고 있는데, 이러한 투과율의 감소는 박막의 두께가 증가할수록 광흡수량이 증가함은 물론 ZnO:Al 박막 표면에서의 산란과 반사 때문인 것으로 사료된다. 제작된 ZnO:Al 박막의 경우 모두 가시광 영역에서 80 % 이상의 투과율을 가졌으며, 자외선 영역에서는 뛰어난 차단효과를 보이고 있음을 알 수 있다.

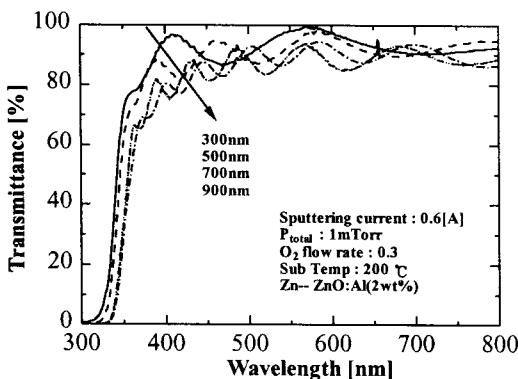


그림 7. 막 두께에 따른 ZnO:Al 박막의 광투과율

4. 결론

FTS장치를 사용하여 상부에는 Zn(4N) 금속타겟과 하부에는 자체 제작한 ZnO:Al(2wt%) 세라믹타겟을 장착하여 slide glass 기판위에 산소와 아르곤 혼합 가스를 이용, ZnO:Al 박막을 제작하였다. 가스압 1mTorr, 기판온도 R.T와 200°C, 투입전류 0.6 A, 산소 가스 유량비 0.3의 조건으로 박막의 두께를 300~900nm으로 변화시켜 ZnO:Al 박막을 제작하였으며 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다. ZnO:Al 박막의 두께가 증가할수록 결정학적, 전기적 특성은 개선되었으나, 광학적 특성은 막내의 광학적 흡수량 증가 등의 이유로 미소하게 감소하였다. 각각의 막 두께에서 제작된 ZnO:Al 박막은 가시광 영역에서의 투과율이 85% 이상으로 우수한 광학적 특성을 보였으며, 2θ 가 34.42°

에 존재하는 (002)면으로 우선 배향되는 결정학적 특성과 비저항값이 $10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 이하로, 투명전도막으로 적용 가능한 ZnO:Al 투명 전도막을 제작할 수 있었다.

감사의 글

“본 연구는 한국전력공사의 지원에 의하여 기초전력공학공동연구소 주관[관리과제번호:00-006호]으로 수행되었음”

(참고문헌)

- [1] Y. Igasaki and H. Saito, J. Apply. Phys., 70, 3613, 1991
- [2] T. Minami, H. Nanto and S. Takata, "Highly Conductive and Transparent ZnO Thin Films Prepared by R.F Magnetron Sputtering in an Applied External D.C Magnetic Fields", Thin Solid Films, 124, pp.43-47, 1985
- [3] M. Labeau, P. Rey, J. L. Deschanvres, J.C. Joubert and G. Delabouglise, "Thin films of high-resistivity zinc oxide produced by a modified CVD method", Thin Solid Films, Vol.213, pp.94-98, 1992
- [4] Masaru Shimizu, Yoojiro Matsueda, Tadashi Shiosaki and Akira Kawabata, "Growth of ZnO Films by the Plasma Enhanced Metalorganic Chemical Vapor Deposition Techniques", J. of Crystal Growth, 71, 209, 1991
- [5] K. Ellmer, R. Cebulla and R. Wendt, "Transparent and conducting ZnO:Al films deposited by simultaneous RF- and DC-excitation of a magnetron", Thin Solid Films, Vol.317, pp.413-416, 1998
- [6] Takashi Tsuji and Mitsuji Hirohashi, "Influence of oxygen partial pressure on transparency and conductivity of RF sputtered Al-doped ZnO thin films", Applied Surface Science 157, pp.47-51, 2000
- [7] M. J. Keum, I. H. SON, S. H. Kong, H. Y. Seung and K. H. Kim, "C-axis orientation of ZnO thin films prepared by DC facing targets sputtering method", J. of KISE, Vol.33, 2000