

RF 마그네트론 스퍼터링법으로 증착한 Al이 첨가된 ZnO 투명전도막의 전기적 특성

김진용 · 이용의 · 조해석 · 이동현* · 김영진** · 김형준

서울대학교 무기재료공학과

*삼성코닝주식회사

**경기대학교 재료공학과

Electrical Properties of Al-doped ZnO Transparent Conducting Thin Films Deposited by RF Magnetron Sputtering

Jin Yong Kim, Yong Eui Lee, Hae Seok Cho, Dong Heon Lee*,

Young Jin Kim** and Hyeong Joon Kim

Dept. of Inorganic materials Engineering, Seoul National University

*Samsung Corning Co., Ltd.

**Department of materials Engineering, Kyonggi University

초 록 첨가제로 Al_2O_3 가 포함된 ZnO 소결체 타겟을 이용하여 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 Al이 첨가된 ZnO박막을 증착하고, 타겟에 첨가된 Al_2O_3 의 농도와 증착시 스퍼터링장치내의 기관위치에 따른 박막의 물성 변화를 고찰하였다. 타겟의 Al_2O_3 첨가농도가 2wt%인 경우에 비저항치 $8 \times 10^{-3} \Omega\text{-cm}$ 인 박막이 증착되었다. 또한 Al_2O_3 가 2wt% 이상 첨가된 경우는 모든 Al이 박막내부에서 Zn를 치환하여 전자주게로의 역할을 하지 못하고, 오히려 치환되지 못한 Al원자의 중성 불순물 산란 효과에 의해 박막의 비저항이 증가하였다. 타겟의 마모영역 위에서 증착된 Al을 첨가한 ZnO 박막은 그 영역 밖에서 증착된 박막보다 높은 비저항값을 나타냈으며, 이는 큰 에너지를 가지는 산소입자의 충돌에 기인한 것으로 여겨진다.

Abstract Al-doped ZnO thin films were prepared by an RF magnetron sputtering method using Al_2O_3 added ZnO sintered targets. The effects of the Al_2O_3 concentration in targets and the substrate position in the sputtering chamber during deposition on the electrical properties of the films were investigated. The films sputtered from 2wt% Al_2O_3 added ZnO target showed resistivities of about $8 \times 10^{-3} \Omega\text{-cm}$. As the Al_2O_3 contents of target increased above 2wt%, the film resistivities, however, increased because Al atoms in the ZnO films were not substituted completely for Zn atoms and thus the excess Al atoms acted not as donors but as neutral impurity scattering centers. The films deposited on the center of the substrate, which faced directly the eroded area of the target, had higher resistivities than those on the edge of substrate. It appeared to be due to the bombardment of the energetic O species during deposition.

1. 서 론

정보통신시대의 도래로 멀티미디어의 중요성이 강조되면서 각종 표시 소자의 개발이 가속화되고 있다. 이에 따라 투광성과 전기 전도성이 우수한 투명 전극용 재료의 연구가 활발하게 이루어지고 있으며, 현재 가장 널리 사용되고 있는 투명전도막 재료는 ITO($In_{2-x}Sn_x$

O_3)이다. 그러나 ITO는 광학적 성질과 전기적 성질이 매우 우수하지만 고가의 In을 원료물질로 사용하는 점과 수소 플라즈마에 노출되는 경우 특성이 열화되는 문제점을 가지고 있다.¹⁾ 따라서, 이러한 ITO의 단점을 보완할 수 있는 새로운 재료로 SnO_2 나 ZnO등에 적절한 불순물을 첨가한 투명전도막에 대한 연구가 이루어지고 있다.

ZnO는 적외선 및 가시광선 영역에서의 투광성과 전기전도성이 우수하며 수소 플라즈마에 대한 내구성이 좋고, 원료가격이 비교적 낮아서 ITO 대체 투명전도막 재료로 부각되고 있다. ZnO는 3.3eV 정도의 넓은 에너지 금지대역을 가지는 n-type 반도체로서, Zn와 O의 화학양론적 정량비가 어긋남에 따라 과량의 Zn에 의한 침입형 Zn나 산소 공공이 전자 주계의 역할을 하여 높은 전기전도성을 나타내는 것으로 보고되어 있다.²⁾ 따라서 과량의 Zn를 포함한 ZnO박막은 산소 분위기에서 열처리를 거치면 Zn와 O의 정량비가 변함에 따라 전기적 성질의 열화가 발생하게 되므로 이러한 전기적 성질의 열적 불안정성을 해결하고, 보다 높은 전기전도성을 얻기 위해 Al, In, Ga, B 등 여러가지 첨가물을 사용하고 있다.^{3~4)} 그런데, Al₂O₃를 첨가한 ZnO타게트를 사용해 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 박막을 증착하는 경우에는 기판의 위치에 따른 전기적 성질의 불균일성이 문제시되고 있다. 이러한 현상은 증착시 기판의 온도, 반응기 압력, 자기장의 형태등에 따라 달라진다고 보고되어 있다.^{5~8)} 본 연구에서는 0~4wt%의 Al₂O₃를 첨가한 ZnO 소결체 타게트를 이용하여 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 Al이 첨가된 ZnO박막을 증착하여, 타게트에 첨가된 Al₂O₃의 농도와 기판의 위치에 따른 박막의 특성 변화를 고찰하였다.

2. 실험방법

본 연구에서 사용한 스퍼터링 장치는 기판이 타게트위에 위치하는 상향 스퍼터링 시스템(upward sputtering system)으로, 타게트 밑에 원형반지 형태의 자석을 설치한 마그네트론 스퍼터링 장비이다.⁹⁾ (Fig. 1) 일반적으로 마그네트론 스퍼터링의 경우에는 타게트 위에 형성되는 자기장에 의해 전자들이 구속되므로 스퍼터링 효율이 증가하고, 2차전자들에 의한 박막의 손상도 줄일 수 있는 장점이 있다. 하지만 이러한 마그네트론 장치는 플라즈마 링이 형성되는 타게트의 일부분에서만 스퍼터링이 일어나게 하여 타게트의 수명과 효율을 저하시키게 된다.

또한 기판이 플라즈마 영역안에 존재할 경우, 플라즈마 밀도의 증가는 마모 영역위에서

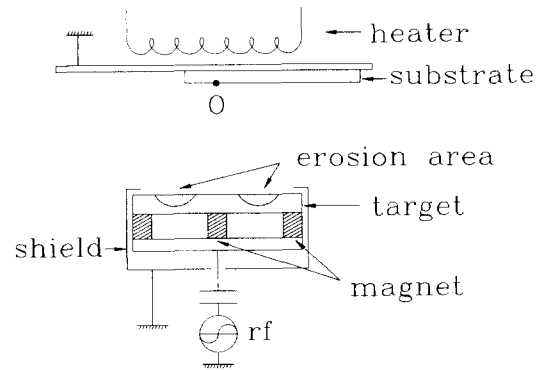


Fig. 1. Schematic diagram of an RF magnetron sputtering chamber, showing the target and substrate configuration

증착되는 박막에 손상을 입히기도 한다.¹⁰⁾ 본 실험에서는 이러한 플라즈마의 영향을 보기 위해 기판을 Fig. 1과 같이 위치하게 하여 박막을 증착하였다. 그리고, 타게트의 마모 영역 위에 위치하는 기판의 중심부분과 플라즈마 영역에서 벗어나 있는 모서리부분에 대한 비교를 통해 기판의 위치에 따른 박막의 특성 변화를 고찰하였다. 기판으로는 25×75mm² sodalime glass(slide glass)를 사용하였고 타게트로는 2" 디스크타입으로 Al₂O₃가 0, 1, 2, 3, 4wt% 첨가된 ZnO 소결체를 이용하였다.

박막의 두께를 Tencor 사의 α -step으로 측정하여 증착속도를 구하였고, 박막의 결정성을 알아보기 위해서 Rigaku사의 X선 회절기(X-ray diffractometer)로 XRD 패턴을 구하였다. 이때 사용한 X선은 Cu-K α 선($\lambda=1.5406 \text{ \AA}$)이었다. 비저항을 알기 위해 4 point-probe로 면저항을 측정하거나 van der Pauw 방법을 이용하여 Hall measurement를 하였다. 박막의 광학적 성질은 UV/VIS Spectrometer를 사용해 190~820nm영역에서 투광성을 측정하였다. 또한 박막의 조성분석을 위해 XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy)를 사용하여 Al의 양과 결합상태를 고찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 증착속도와 결정성

Fig. 2는 RF 전력 80W, 기판온도 300°C일 때, 반응기 압력 40, 100mTorr에서 증착시킨 박막의 증착속도 변화를 타게트의 Al₂O₃ 첨가량에 따라 나타낸 것이다. 타게트의 Al₂O₃양

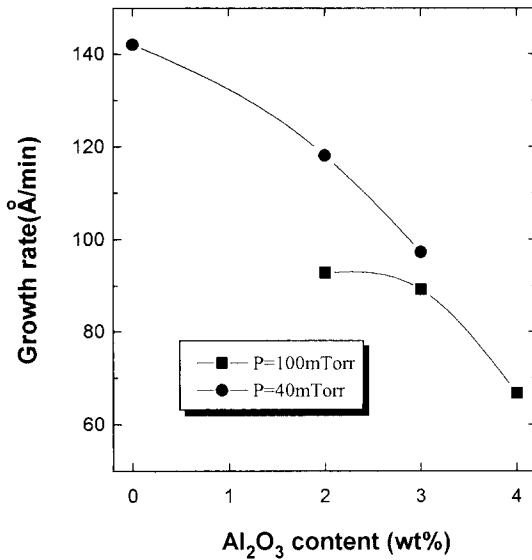


Fig. 2. Variation of growth rate of Al-doped ZnO films as a function of Al₂O₃ content in target

이 증가할수록 박막의 증착속도는 감소한다. 이는 Al₂O₃의 양이 많아지면서 스퍼터링 효율이 감소하여 결국 기판에 도달하는 입자의 양이 감소하는 것으로 여겨진다. 또한 반응기 압력이 10mTorr 정도로 낮은 압력 조건에서 증착한 박막의 표면 형상을 관찰하면, 박막은 Al의 양이 증가할수록 육안으로 확인될 정도의 거친 표면을 가지게 된다. 이는 Al의 양이 많을수록 큰 에너지를 지닌 입자들에 의한 resputtering이 심하게 일어나기 때문에 초래되는 것으로 판단된다. 이러한 Al양에 따른 resputtering의 증가는 Fig. 2에서의 타겟 Al₂O₃ 첨가량 증가에 따른 성장속도의 감소를 설명해주는 또 하나의 원인이 된다.

Fig. 3은 Fig. 2와 동일한 조건인 300°C에서 증착한 박막의 XRD패턴이다. 본 실험에서 증착한 ZnO 박막은 모두 기판에 수직인 방향인 c축으로 (002) 우선배향되었다. 이는 육방정계의 wurtzite구조를 가지는 ZnO에서 (002)면으로 최밀 충진됨으로써 박막의 표면에너지를 최소화하는 경향에 의한 것으로 생각된다. 또한, Al을 첨가한 ZnO박막에서도 (002) 우선배향성은 변화가 없었지만, 순수한 ZnO 박막보다 결정성이 감소하였다. 증착시 기판을 의도적으로 가열하지 않는 경우엔 순수한 ZnO 박막은 (002)로 우선배향되었지만, Al을

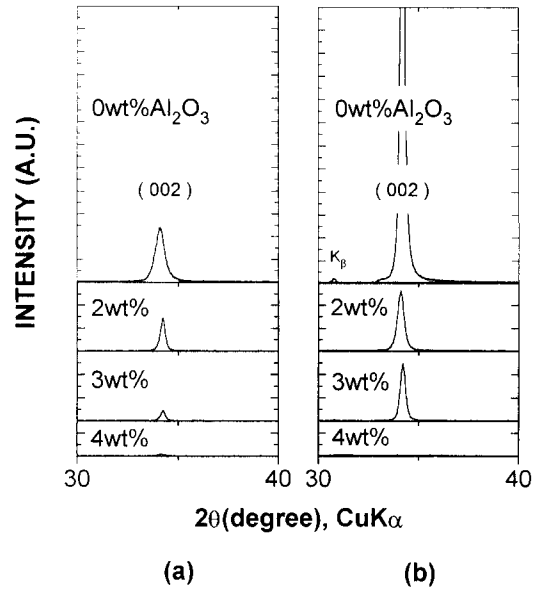


Fig. 3. Variation of XRD patterns of the films deposited from 0~4wt% Al₂O₃ added ZnO sintered targets at (a) 80W, 100 mTorr, 300°C and (b) 80W, 40 mTorr, 300°C

첨가한 ZnO박막은 XRD 피크가 나타나지 않았다. 타겟에 Al₂O₃의 농도가 3wt%이하의 경우에 250°C 이상의 기판온도에서 증착하면 (002) 피크만이 관찰되었다. 이러한 현상은 박막의 증착시 Al을 첨가함에 따라 기판에 도달한 입자들의 표면이동도가 떨어져 비정질화되거나, Al이 결정립 성장을 억제하는 역할을 함에 따라 박막이 미세결정립(microcrystalline)으로 이루어지기 때문이라고 생각된다. 타겟 제조시에 Al₂O₃ 첨가량이 증가할수록 소결이 잘 이루어지지 않았던 점으로 미루어 볼 때, Al이 ZnO의 확산 및 이동을 방해하는 역할을 한다고 여겨진다. 이러한 현상은 Al의 양이 증가하면 더욱 잘 나타나며, 기판온도 300°C에서 증착한 박막의 Al₂O₃양에 따른 결정성 감소(Fig. 3)도 역시 이러한 이유로 설명할 수 있다.

3.2. 전기적 성질

순수한 ZnO 박막은 대부분 측정 범위 이상의 높은 저항값을 나타내거나, 시편의 전기적 성질이 불안하여 신뢰성이 없는 결과들을 보여주었다. 이는 증착시에 큰 에너지를 가지고

충돌하는 산소들이 입계나 표면등으로 쉽게 흡착되어 전자의 유효농도를 감소시키기 때문인 것으로 생각된다. 부족한 전자의 농도를 증가시키고 전기적 성질을 안정화시키기 위해 Al₂O₃를 첨가한 타게트를 이용하여 박막을 증착하였다. 타게트의 Al₂O₃ 함유량이 증가할수록 비저항값은 감소하다가 2wt% 이상으로 Al₂O₃ 함유량이 증가하면 다시 증가하였다(Fig. 4).

기판의 중심영역(Fig. 1의 기판중심의 O점)에서 증착된 박막들은 여러 문헌상^(11~13)에 나와있는 비저항값보다 매우 높은 비저항값들을 보였다. 이는 순수한 ZnO의 경우와 마찬가지로 스퍼터링시에 타게트의 표면에서 나오는 큰 에너지 산소입자의 충돌에 의한 영향으로 여겨진다. 플라즈마 영역에서 벗어난 영역에서 증착된 박막들이 중심부에서 증착된 것들보다 더 낮은 비저항값을 보이는 결과도 역시 이러한 현상을 잘 설명해주고 있다. Al이 2wt% 첨가된 ZnO박막의 경우에 Hall measurement를 하면, 전자의 농도는 기판의 모서리부분이 기판의 중심부분에 비해 10배정도 높은 10¹⁹~10²⁰cm⁻³의 값을 보이나, 전기이동도는 크게 변하지 않았다. 따라서 이러한 큰 에너지 산소입자 충돌의 영향은 박막내부의 전자 농도의 감소를 유발하여 결과적으로 비저항을 증가시키고 있다.

이러한 기판의 위치에 따른 입자충돌의 영향을 확인하기 위해 2wt% Al₂O₃ 첨가 타게트를 이용하여 반응기 압력을 변화시키면서 기판 중심으로부터의 거리에 따른 비저항 변화를 측정해 보았다(Fig. 5). 모든 경우 중심부분에서 멀어질수록 비저항값은 감소하였고, 타게트의 마모영역(Fig. 1참조) 위에서 증착한 부분이 가장 큰 비저항값을 보인다. 이는 Fig. 4의 결과와 잘 일치하고 있다.

기판의 중심부분에서의 비저항의 증가는 큰 에너지 입자의 기판충돌이 많아지게 되는 낮은 아르곤 압력일수록 더욱 심해지며, 입자산란이 많이 일어나서 입자충돌효과가 적은 100mTorr조건에서 낮은 비저항값을 지닌 박막이 얻어졌다. 하지만 20mTorr이하의 낮은 압력에서 증착한 박막에서도 전체적으로 낮은 비저항값을 보였다. ZnO 다결정질 박막의 비저항은 주로 입계면에 형성되는 에너지 장벽의 크기와 수에 의해 결정되므로, 결정립의

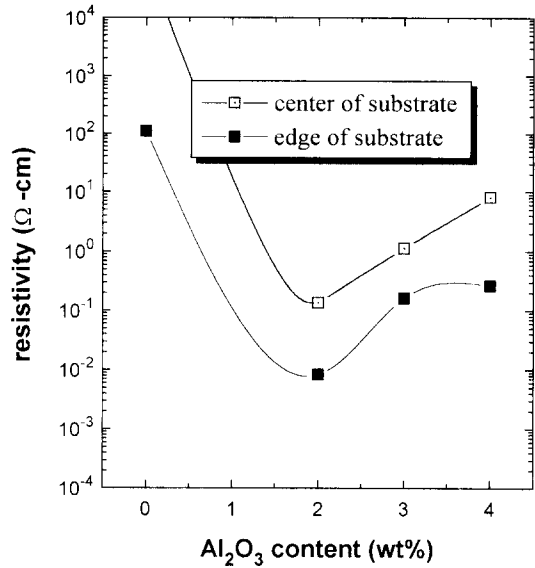


Fig. 4. Variation of resistivities of the ZnO films deposited at RF=80 W, P_{Ar}=100 mTorr and T_s=300°C, as a function of Al₂O₃ content

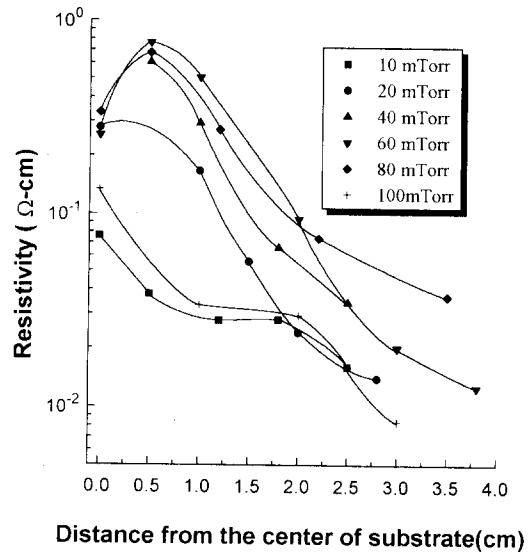


Fig. 5. Positional dependence of the resistivities of the 2 wt% Al-doped ZnO films deposited at RF=80W and T_s=300°C, as a function of sputtering pressure

크기가 커서 입계면의 상대적인 밀도가 작거나 입계면에 산소 이온 등의 흡착 등이 적은 경우에 비저항값이 낮아진다.^(16~18) 본 연구에서 아르곤 압력이 낮아지면, 큰 에너지를 지닌 산소입자의 기판 중심부분에 충돌이 증가한다. 이때 박막내부의 입계면에 산소의 흡착

이 용이하게 된다. 결국 전자주계에 의해 공급되는 전자들을 잡아두는 trap state를 많이 형성하게 되어, 전기 전도에 참여하는 실제 유효전자의 농도가 줄어들게 된다. 반면에 기판의 모서리 부분은 타게트의 마모영역으로부터 충분히 멀리 떨어져 있으므로 인해, 큰 에너지 산소입자 충돌의 영향을 비교적 덜 받게 될 것이다. 실제로 2wt% Al을 첨가한 ZnO 박막의 바깥 부분에서 전자의 농도와 전기 이동을 보면 아르곤 압력에 따른 영향이 거의 없음을 알 수 있다(Fig. 6).

하지만 압력이 매우 낮아지면 금속에 비해 결합 에너지가 작은 산소 원자의 선택적인 resputtering 효과가 커져서²⁰⁾ 박막내부에 존재하는 Zn의 상대적인 양이 증가하고, 따라서 과량의 Zn에 의한 전자의 농도는 늘어나게 된다. 이러한 박막내부의 과도한 산소결핍은 박막의 투광성에도 영향을 끼쳐 20mTorr 이하의 아르곤 압력에서 증착한 박막은 붉은 색을 띠게 된다. 이는 ZnO분말이 결정조내에 0.02~0.03% 정도의 과량의 Zn가 포함되면 붉은 색으로 변하는 것과 잘 일치한다.¹⁹⁾

이러한 아르곤 압력의 변화는 입자충돌이 일어나는 영역에서 전기 이동을 저하시키는 격자왜곡의 발생등에도 영향을 줄 수 있다. 하지만 순수한 ZnO에서와는 달리 Al을 첨가한 ZnO에서 전기이동도에 지배적인 역할을

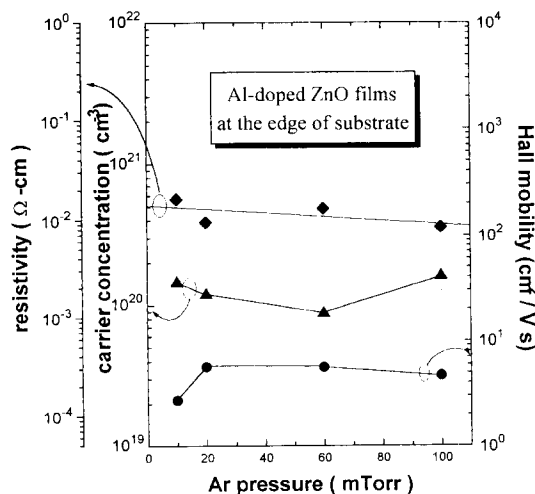


Fig. 6. Resistivities (◆), Hall mobilities (▲) and carrier concentrations (●) of the 2wt% Al-doped ZnO films deposited on the edge of substrate at the same conditions as in Fig. 5.

하는 것은 이온화된 불순물에 의한 산란 효과임을 고려해볼 때^{16~17)}, 격자의 왜곡에 따른 전기이동도의 감소는 전기 전도도에 지배적인 영향을 주지 못할 것으로 예상된다. 실제로 Hall measurement를 통해 전자의 농도와 전기이동도를 측정해보면 아르곤 압력에 따른 비저항의 변화에서는 전자의 농도가 지배적인 역할을 함을 확인할 수 있었다.

스퍼터링에서 기판에 증착된 박막의 조성은 타게트의 조성과 일치한다고 일반적으로 알려져 있다. 이러한 가정하에 타게트의 조성을 변화시키면서 Al을 첨가한 ZnO 박막 내부의 Al 첨가 농도를 조절하였다. 그런데 Fig. 4를 보면 증착한 박막의 저항치는 타게트의 Al_2O_3 양이 2wt%인 경우에 가장 낮았으며, 그 이상의 농도에서는 다시 증가함을 알 수 있다. 그래서, 증착된 박막 내부에서의 Al의 농도와 상태를 알아보기 위하여 XPS분석을 하였다. Al_2O_3 의 함량이 2wt%와 4wt%인 타게트를 이용해 Fig. 4와 같은 조건에서 증착한 박막의 Al-2p 스펙트럼을 분석해 본 결과를 Fig. 7에 나타내었다.

이 스펙트럼의 면적으로부터 박막내부의

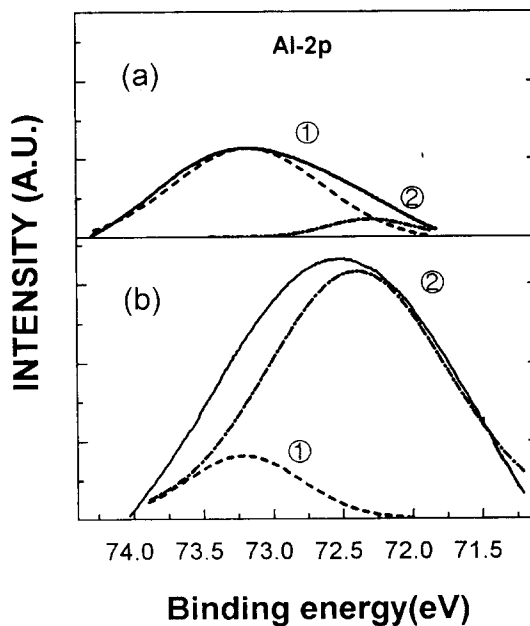


Fig. 7. XPS spectra of Al-2p of Al-doped ZnO films deposited from (a) 2 wt% Al_2O_3 +ZnO target and (b) 4wt% Al_2O_3 +ZnO target; ① and ② indicate Al^{3+} and Al^0 state respectively.

Al 농도를 구하면 실제로 4wt% 시편 내부의 Al양이 2wt%(=3.2atom%)의 2.96atom%보다 3배 이상 큰 8.91 atom%를 나타내었다. 측정상의 오차를 고려하더라도 이는 4wt% 시편에 2wt%에서 보다 실제로 2배 이상의 Al이 박막 내부에 존재함을 알려준다. 또한 두 시편에서 나타나는 Al-2p 스펙트럼의 비대칭적인 모양의 차이는 결국 박막내부 Al의 결합상태가 서로 다를 것을 나타내고 있다. 즉, Al-2p 스펙트럼은 Fig. 7에 표시된 ①피크(73.12eV)와 ②피크(72.16eV)의 합인 결과로 여겨지는데, 피크의 이동정도를 고려하면 ①피크는 Al이 ZnO내에서 Zn를 치환함에 따른 AlO상태의 Al 결합에너지 나타내고, ②피크는 금속상태로 남아있는 Al을 나타낸다. 결국 2wt% 시편에서는 대부분의 Al이 Zn를 치환하여 전자주게로의 역할을 하고있는 반면, 4wt% 시편안에 있는 과량의 Al은 실제로 Zn 자리를 치환하지 못하고 많은 양이 금속상태로 남아있음을 보여주고 있다.

따라서 4wt% 시편에 Al이 더 많이 들어 있음에도 불구하고 높은 비저항을 보이는 것은 2wt%보다 전자농도의 증가량은 거의 없고, 과량의 Al에 의한 중성 불순물 산란 효과에 의해서 전기 이동도의 급격한 감소가 일어나기 때문으로 여겨진다. Hall measurement에 의하면 4wt% 시편의 경우 대부분 박막의 전자 농도는 2wt%의 경우와 비슷한 10^{20}cm^{-3} 정도이나, 전기이동도는 약 $10^{-1} \text{cm}^2/\text{Vsec}$ 로 낮은 값을 보이는데, 이는 제시된 전도 기구를 잘 뒷받침한다.

3. 3. 광학적 성질

Fig. 8은 Al의 양에 따른 Al을 첨가한 ZnO 박막의 광투과율을 측정된 것이다. 80W, 40mTorr에서 기판의 온도를 300°C로 가열하면서 증착시킨 시편의 측정값이다. 가시광 영역($\lambda=550\text{nm}$)에서 모든 시편이 90%이상의 높은 투과율을 보여주고 있다. 또한 단파장 영역에서 투과율은 급속히 감소함을 알 수 있다. 이는 입사광의 에너지가 증가하여 ZnO 박막에 의해서 흡수되는 양이 증대되므로 나타나는 현상이다. 이 흡수단에서의 투과율(T)을 이용하여 에너지 금지대 폭을 구하면 Fig. 9에서 보는 바와 같이, 순수한 ZnO박막에서의

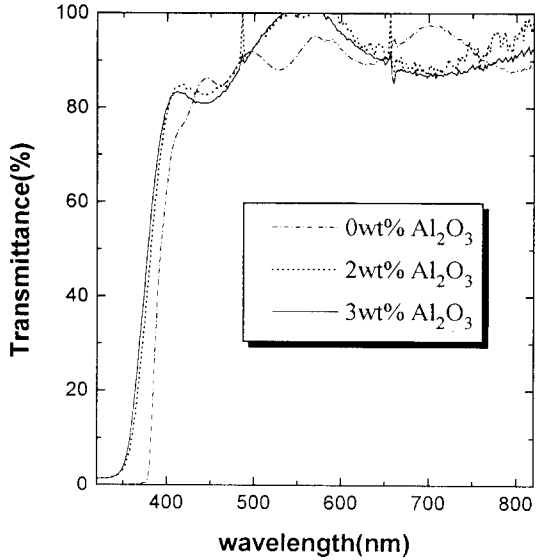


Fig. 8. Transmission spectra of the Al-doped ZnO films with different Al₂O₃ content in target, deposited at RF =80W, P_A=40mTorr and T_S=300°C

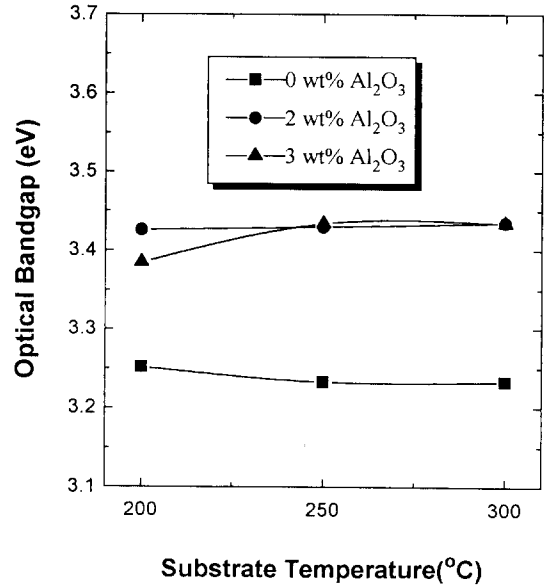


Fig. 9. Variation of the optical bandgap of Al-doped ZnO films as a function of T.

광학적 에너지 금지대 폭은 약 3.23eV 정도 이고, Al을 2wt%이상 첨가한 ZnO에서는 약 3.42~3.43eV 정도로 증가하였지만, Al의 첨가량에 따른 큰 변화는 보이지 않았다. 이러한 에너지 금지대 폭증가를 Burstein-Moss shift에 의해 고려하면 전자 농도의 증가량을

알아볼 수 있는데³⁾, 계산에 의한 결과는 10^{20} cm^{-3} 정도로 나온다. 또한 Al이 2wt% 이상 첨가된 박막에서 Al의 증가에 따른 에너지 금지대 폭의 증가가 없는 것은 2wt% 이상의 Al ZnO 내부에서 Zn를 치환을 하지 못하고 금속 상태로 남아 있어서 더 이상의 전자 농도의 증가가 없다는 앞의 실험결과들과 잘 일치한다.

4. 결 론

투명전도막으로의 응용성을 검토하기 위해서 Al_2O_3 를 첨가한 ZnO소결체 타게트를 이용하여 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 Al 첨가한 ZnO 박막을 증착하였다. 순수한 ZnO박막의 경우에는 높은 저항치를 가졌으나 타게트에 Al_2O_3 첨가농도가 2wt%의 경우 비저항치 $8 \times 10^{-3} \Omega\text{-cm}$ 인 박막을 제조할 수 있었으며, 이때 전하나르케 농도는 $1.6 \times 10^{20}/\text{cm}^3$, 전하이동도는 $5\text{cm}^2/\text{Vsec}$ 의 값을 보였다. 또한 2wt% 이상의 Al_2O_3 첨가 경우는 모든 Al이 박막내부에서 Zn를 치환하여 전자주게로의 역할을 하지 못하고, 오히려 치환되지 못한 Al에 의한 중성 불순물 산란효과의 증가에 의한 전기 이동도의 급격한 감소로 비저항의 증가가 발생하였다.

이러한 박막의 결정학적, 전기적 특성은 타게트의 마모영역과 관계하는 기관의 위치에 의존하는 경향을 보였다. Al을 첨가한 ZnO 박막의 비저항치는 모든 경우 기관의 중심부가 바깥 부분보다 비저항값이 높게 나타났으며, 이는 큰 에너지를 가진 산소입자가 증착되는 박막에 충돌함으로 발생하는 현상으로 여겨진다. 이러한 기관의 중심부에서의 비저항 증가는 반응기 압력을 증가시킴으로서 어느 정도 감소시킬 수 있었다.

또한 증착한 Al 첨가 ZnO박막은 가시광선 영역에서($\lambda=550\text{nm}$) 90% 이상의 우수한 광학적 특성을 보였으며, 약 3.42~3.44eV의 광학 에너지 금지대 폭을 가졌다.

감사의 글

본 연구는 1992년도 신소재 박막가공 및 결정성장 연구센터의 연구비 지원에 의해 이루어졌으므로, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. S. Major, K.L. Chopra, *Solr Energy Materials*, 17, 319(1988)
2. W. Hirschwald et al., *Current Topics in Materials Sciences*, 7, pp. 143, edited by E. Kalids, North-Holland Pub. Co., New york (1981)
3. B.H. Choi, H.B. Im, J.S. Song, *J. Am. Ceram. Soc.*, 7(35), 1347 (1990)
4. S. Kohiki, M. Nishitani, T. Wada, *J. Appl. Phys.*, 75(4), 2069 (1994)
5. K. Tominaga, Y. Sueyoshi, H. Imai and M. Shirai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31, 3009 (1992)
6. K. Tominaga, K. Kuroda, O. tada, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 27(7), 1176 (1988)
7. T. Minami, H. Sato, H. Imamoto and S. Takata, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31, L257 (1992)
8. A.C. Anderson, D.E. Oates, 1982 *Ultrasonics Symposium Proceedings*, New York: IEEE, 329(1982)
9. 강창식, 김영진, 김형준, 김윤호, *한국결정학회지*, 2(2), 1(1991)
10. K. Tominaga, N. Ueshiba, Y. Shintani and O. Tada, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20, 519 (1981)
11. Z.C. Jin, I. Hanberg and C.G. Granqvist, *J. Appl. Phys.*, 64(10) 5117 (1988).
12. T. Minami, H. Sato, H. Imamoto, S. Takata, N. Ogaw, T. Mouri, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31, L1106(1992).
13. T. Minami, H. Nanto and S. Takata, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 23(5), L280 (1984).
14. J.B. Webb, D.F. Williams and M. Buchanan, *Appl. Phys. Lett.*, 39(8) 640 (1981).
15. T. Minami, H. Nanto and S. Takaka, *Thin Solid Films*, 124, 43 (1985).
16. S. Ghosh, A. Sarkar, S. chaudhri and A.K. Pal, *Thin Solid Films*, 205, 64 (1991)
17. K. Ito and T. Nakazawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, L245 (1983).
18. L.L. Kazmerski, *Polycrystalline and Amorphous Thin Films and Devices*, pp. 59, edited

- by L.L. Kazmerski, Academic Press, Inc, New York, (1980)
19. M. Farnsworth, C.H. Kline, *Zinc chemicals*, 2nd ed., p. 38, International Lead Zinc Research Organization, Inc. and Zinc Institute Inc., N.Y., U.S.A. (1983)
20. R. Kelly, *Handbook of Plasma Processing Technology: fundamentals, etching, deposition, and surface interactions*, edited by S. M. Rosnagel, J.J. Cuomo, W.D. Westwood (NOYES PUBLICATIONS, 1990), chap. 4 ; Nucl. Instr. Meth. B18, 388(1987)