

논문 20-11-8

## RF 마그네트론 스퍼터링법으로 증착한 ZnO 박막의 증착온도에 따른 구조 및 전기적 특성

### Dependences of Various Substrate Temperature on the Structural and Electrical Properties of ZnO Thin Films deposited by RF Magnetron Sputtering

오수영<sup>1</sup>, 김응권<sup>1</sup>, 이태용<sup>1</sup>, 강현일<sup>1</sup>, 이종환<sup>1</sup>, 송준태<sup>1,a</sup>  
(Su-Young Oh<sup>1</sup>, Eung-Kwon Kim<sup>1</sup>, Tae-Yong Lee<sup>1</sup>, Hyun-Il Kang<sup>1</sup>, Jong-Hwan Lee<sup>1</sup>, and Joon-Tae Song<sup>1,a</sup>)

#### Abstract

In this study we investigated the variation of the substrate temperatures using RF sputtering to identify the effect on the structure and electrical properties by c-axis orientation of ZnO thin film. ZnO thin films were prepared on Al/Si substrate. In our experimental results, ZnO thin film at 300 °C was well grown with (002) peak of ZnO thin film, the thin film showed the high resistivity with the value of  $5.9 \times 10^7 \Omega\text{cm}$  and the roughness with 27.06 nm. As increased the substrate temperatures, the grain size of ZnO thin films was increased. From these results, we could confirm the suitable substrate temperature of ZnO thin films for FBAR(film bulk acoustic resonator).

**Key Words :** ZnO, FBAR, Substrate temperature

#### 1. 서 론

최근 반도체 산업기술이 발전되어짐에 따라 더 육더 다양한 재료들이 연구되어지고 있으며 재료에 대한 응용 범위 또한 확대되어지고 있다 그중 ZnO 박막은 wurtzite 결정 구조를 가지는 물질로서 가시광선 영역에서 높은 투과율, 압전상수, 강한 전기기계 및 비선형 전기 광학계수, 온도 안정성, 그리고 넓은 밴드갭을 가져 압전 트랜스듀서, 가스검출 센서, 발광다이오드, 태양전지, 투명소자 등의 다양한 응용분야에 적용되어지고 있다[1]. 그 중 압전특성을 활용하기 위한 ZnO 박막은 유리, 실리콘, 금속 박막 등의 기판 상에 형성되는 c축 결정형 배향막과 사파이어 등의 단결정 기판 상에 형성되는 단결정막이 디바이스에 응용되고 있으며, ZnO가 갖는 결정 대칭성에 따라 c축 방향과 극성

이 일치되어 있으면 단결정 박막과 등가인 압전성을 갖는다[2]. 이런 ZnO 박막을 압전 특성을 필요로 하는 FBAR, SAW등의 소자에 적용하기 위해서는 높은 비저항, 우수한 c축 배향성, 평탄한 표면 거칠기가 필수적이다. 이러한 요소들은 일반적으로 증착시의 기판온도나 공급 전력 또는 진공도와 같은 증착조건들에 의해 결정된다[3]. 따라서 본 실험에서는 ZnO 박막의 전기적 특성을 항상시키기 위하여 기판온도의 변화에 따라 100 °C, 200 °C, 300 °C, 400 °C, 500 °C 증착하였고 이에 따른 ZnO 박막의 c축 배향성이 박막의 재료 및 전기적 특징에 미치는 영향을 확인하였다.

#### 2. 실 험

ZnO 박막의 c축 배향성이 재료 및 전기적 특성에 분석하기 위해 온도에 따른 ZnO 박막의 구조적, 전기적 특성을 분석하였다. 증착하기에 앞서 실리콘 웨이퍼 세정을 위해 5분간 아세톤(Aceton), 메탄올(Methanol) 순으로 초음파 세척한 후 탈이온수(Deionized water)를 이용하여 5분 이상 세척

1. 성균관대학교 정보통신공학부

(경기도 수원시 장안구 천천동 300)

a. Corresponding Author : jtsong@yurim.skku.ac.kr

접수일자 : 2007. 9. 7

1차 심사 : 2007. 9. 21

심사완료 : 2007. 10. 22

하였다. 상·하부 전극은 탄성 질량 부하 효과가 작은 Al을 열 증발장치를  $5.0 \times 10^{-5}$  의 고진공에서 Al 벌크소스를 이용하여 Si위에 200 nm의 두께로 증착하였고 ZnO 압전 박막은 RF 마그네트론 스퍼터 장비를 이용하여 압전 박막을 증착하였다. 증착 조건은 가스비 Ar:O<sub>2</sub>(10:10) 타겟과 기판과의 거리 7 cm를 유지하고 ZnO 박막을 증착하였다. 기판의 온도 상승에 따른 박막의 특성을 분석하였다. 증착된 ZnO 박막의 결정구조와 미세조직의 분석을 위해 X-ray diffractometer를 이용하여 인가전압과 전류값이 각각 40 kV, 50 mA이고, 분석 각은 20~60°, 스캔 스피드는 0.05 °/sec, 스텝 사이즈는 0.1°로 하여 측정하였으며, 박막표면과 거칠기 분석을 위해 각각 SEM(Scanning Electron Microscope)과 AFM (Atomic Force Microscope)을 사용하였다. 비저항은 (4-point probe)를 이용하여 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 기판 온도에 따른 ZnO 압전 박막의 X선 회절 분석 측정 결과의 변화를 나타내었다. 1 μm의 동일 두께를 가지는 ZnO 박막을 기판온도의 변화에 따라 분석하였다. 측정 결과 기판 온도가 100~300 °C까지 증가함에 따라 34.4 °에서 기판에 수직인 ZnO 압전 박막의 (002) 주 피크가 잘 성장되는 것을 보이며 c축 배향성이 증가함을 확인하였다. 그러나 기판온도가 400 °C에서 발생한 36.28° (101) 피크의 결과로 볼 때 다결정으로 성장되는 경향 보이면서 주 피크는 상대적으로 감소하는 경향을 보였고 500 °C의 결과에서 알 수 있듯이

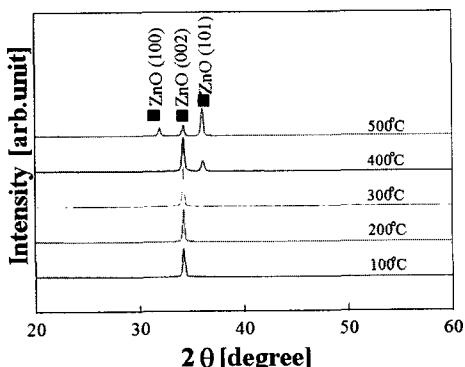


그림 1. 기판온도에 따른 ZnO 압전 박막의 X선 회절 패턴.

Fig. 1. XRD pattern of ZnO thin film by variation of the substrate temperature.

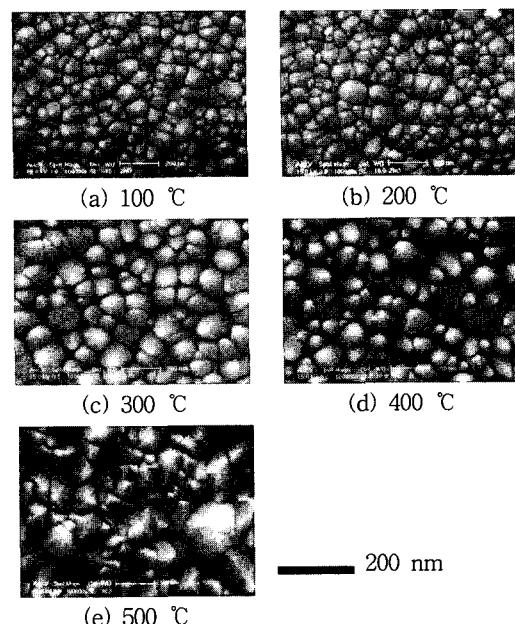


그림 2. 기판온도에 따른 ZnO 압전 박막의 표면 SEM 사진.

Fig. 2. The surface SEM images of ZnO thin film by variation of the substrate temperature.

(100)피크가 추가 성장됨으로서 다결정되는 영역을 뚜렷이 알 수 있다. 이러한 현상은 기판 온도가 증가할수록 기판에 도달하는 원자들의 이동도를 증가시켜 이들로 하여금 안정된 자리로 이동할 수 있도록 하여 결정화 및 치밀화에 기여하지만 증착온도가 계속증가하면 증착속도 또한 증가함에 따라서 증착된 원자들이 미처 안정된 자리로 찾아가지 못한 상태에서 계속 그 위에 스퍼터링된 원자들이 도달하게 되어 결정화 및 치밀화를 저해하게 된다[4].

그림 2는 기판 온도에 따른 ZnO 압전 박막에 대한 SEM 표면 측정 사진이다. ZnO 결정들은 기판온도 200 °C까지의 샘플에서 작은 결정들과 섞여있는 것을 볼 수 있다. 기판온도 300 °C의 샘플에서는 그림에서 알 수 있듯이 결정립들이 가장 조밀하고 균일하였다. 이러한 결과는 낮은 기판 온도에서 증착은 이동도가 낮아 쉽게 결정 구조를 형성하는 경향이 있고 거친 표면을 갖는다. 반면 높은 온도에서의 증착은 흡착된 원자의 이동도가 증가되고 이것의 증가는 표면 에너지의 증가로 표면 거칠기가 향상되고 좋은 박막을 확보할 수 있다[5]. 그러나 ZnO 박막의 경우 기판온도가 500 °C 일 때와 300 °C 일 때의 ZnO 박막의 그레인 크기가

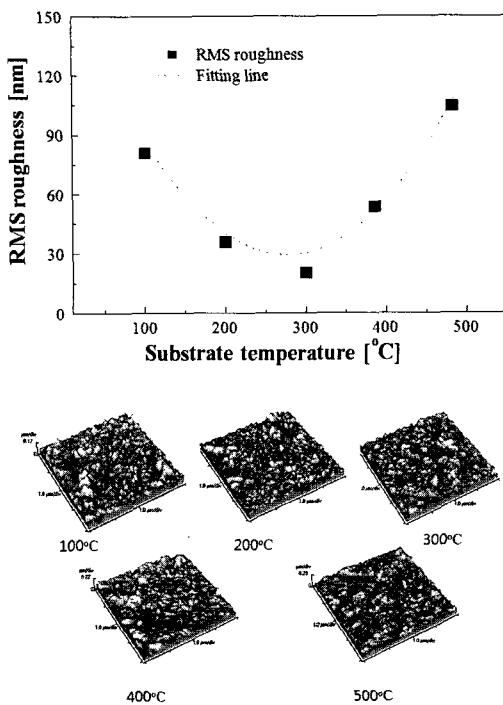


그림 3. 기판온도에 따른 ZnO 압전 박막의 AFM.  
Fig. 3. AFM images of ZnO thin film by variation of the substrate temperature.

뚜렷하게 큰 차이를 보였다. ZnO 박막의 경우 일 반적으로 결정립 크기가 커지는 경우 c축 배향성이 향상되어지나[6] 본 실험에서는 이러한 일치성을 확인할 수 없었으며 이는 XRD의 결과로 볼 때 (002)주 피크의 감소와 더불어 (101), (100)의 ZnO 다결정 성장과 연관이 있는 것으로 판단되며 다결정 성장으로 인한 결정립들이 c축과 무관하게 성장한 결과라 볼 수 있다.

그림 3은 증착된 ZnO 압전 박막의 표면 거칠기를 조사하기 위해 AFM 이용하여 거칠기를 나타낸 것이다. SEM에서도 확인 할 수 있듯이 ZnO 결정들은 기판온도 200 °C까지의 샘플에서 작은 결정들과 섞여있는 것을 볼 수 있다. 이것들은 표면 거칠기를 상승시키는 요인으로 작용할 것으로 판단되어진다. 기판 온도 300 °C에서 표면 거칠기가 83.9 nm에서 27.06 nm으로 감소하여 매끄러운 표면을 나타냄을 확인하였다. 이는 증착 시 기판온도가 증가함에 따라 grain boundary의 porosity가 감소하고 더욱 조밀해 지는 경향이 있기 때문이다[6]. 또한 기판 온도가 높을수록 원자의 이동성이

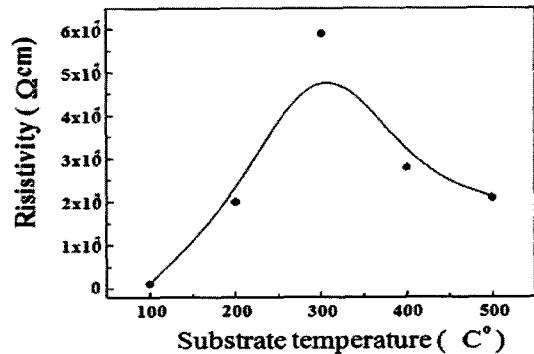


그림 4. 기판온도에 따른 ZnO 박막의 비저항.  
Fig. 4. Resistivity of ZnO thin film by variation of the substrate temperature.

필요한 열적에너지를 보상 받음으로써 보다 안정된 표면 에너지를 가지기 때문이라 판단되어진다[4]. 하지만 400 °C 이상부터는 59.6 nm로 다시 거칠기가 상승하는 경향을 나타내었다. 이는 SEM에서의 결과에서도 알 수 있듯이 grain 크기가 과정장 함으로 인하여 박막 전체의 표면 균일성이 저하되어지는 것으로 판단되어진다[7].

그림 4는 기판온도 증가에 따른 비저항 값을 나타내었다. 박막의 비저항은 106에서 107 Ω·cm의 값을 가지며 기판온도의 증가에 따라 박막의 비저항 값이  $5.9 \times 10^{-6}$  점차 증가하다가 300 °C를 기준으로  $2.8 \times 10^{-6}$ 로 다시 감소하는 경향을 나타내었다. XRD 결과에서도 확인 할 수 있듯이 기판에 수직한 c축 방향을 갖는 ZnO 박막의 결정화가 향상되어 점에 따라 박막 내부의 결함이 감소되어 점에 따른 것으로 판단되어진다. 하지만 400 °C에서는 비저항이 오히려 감소하는 경향을 나타내는데 이와 같이 기판 온도가 증가함에 따라 비저항이 감소하는 것은 SEM에서도 알 수 있듯이 결정립계의 크기변화가 가장 큰 영향을 나타내는 것으로 보인다. 박막 내에서 결정립과 결정립 사이에 존재하는 결정립계는 전자의 이동 과정에서 산란을 유발하여 저항에 큰 영향을 미친다. 즉 높은 기판 온도는 원자 에너지를 증가시켜 표면 거칠기를 증가와 결정립의 성장을 촉진시킴에 따라 전자들의 평균자유행로를 감소시킨다. 따라서 이런 결정립의 과다한 성장은 전자가 이동하는 대 있어 장벽으로 작용하기 때문에 비저항 값이 감소하는 것으로 판단되어진다[8].

#### 4. 결 론

본 실험에서는 ZnO 박막의 c축 배향성이 재료 및 전기적 특성에 끼치는 영향에 관한 연구하기 위하여 압전성을 갖는 ZnO 박막을 RF sputter 법을 이용하여 Al/Si 기판 위에 증착하였고 기판온도 변화에 따른 박막의 미세조직 및 전기적 특성변화를 조사하였다. XRD 분석결과 300 °C 기판에서 수직인 ZnO 압전 박막의 (002) 주 피크가 잘 성장되는 것을 보이며 c축 배향성이 증가함을 확인하였고, 이에 따른 SEM 분석결과 역시 결정립들이 300 °C에서 가장 조밀하고 균일하였다. 또한 비저항, 표면 거칠기의 특성 측정 결과에서도 또한 300 °C에서 가장 좋은 결과를 나타내었다.

#### 참고 문헌

- [1] 박용옥, 윤석진, 최지원, 김현재, 정형진, 박창엽, "RF 마그네트론 반응성 스퍼터링으로 제작된 ZnO / Glass 박막 특성", 전기전자재료학회 논문지, 11권, 10호, p. 833, 1998.
- [2] Z. Yan, Z. Song, W. Liu, and H. Ren, "Material and device properties of ZnO-based film bulk acoustic resonator for mass sensing applications", Applied Surface Science, Vol. 253, No. 15, p. 9372, 2007.
- [3] 신영화, 권상직, 김형준, "FBAR 소자제작을 위한 ZnO 박막 증착 및 특성", 전기전자재료학회 논문지, 18권, 2호, p. 159, 2005.
- [4] 강창석, 김영진, 김형준, 김윤호, "RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용한 ZnO 박막 증착에 관한 연구", 한국결정학회지, 2권, 10호, p. 1, 1995.
- [5] S. Singh, R. S. Srinivasa, and S. S. Major, "Effect of substrate temperature on the structure and optical properties of ZnO issue thin films deposited by reactive rf magnetron sputtering", Thin Solid Films, Vol. 24, No. 3, p. 8718, 2007.
- [6] 김봉석, 강영훈, 조유혁, 김웅권, 이종주, 김용성, "FBAR용 ZnO 박막의 열처리 온도변화에 따른 미세조직 및 전기적 특성", 한국세라믹학회지, 43권, 1호, p. 42, 2006.
- [7] M. L. Cui, X. M. Wu, L. J. Zhuge, and Y. D. Meng, "Effects of annealing temperature on the structure and photoluminescence properties of ZnO films", Vacuum, Vol. 81, No. 28, p. 899, 2007.
- [8] W. Tang, K. Xu, P. Wang, and X. Li, "Surface Roughness and Resistivity of Au Film on Si-(111) substrate", Micro-electronic Engineering, p. 445, 2003.