

기판온도에 따른 ZnO박막의 결정구조 및 전기적 특성

The effect of substrate temperature on crystallography and electrical properties of ZnO thin films

°금민중°, 성하윤°, 손인환°, 장경욱°, 김경환°
(°M.J.Keum°, H.Y.Seong°, I.H.Son°, K.W.Jang°, K.H.Kim°)

Abstract

In this paper we studied that the effect of substrate temperature on crystallography and electrical properties of ZnO thin films. Facing Targets Sputtering system can deposit thin films 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 to preparing high quality ZnO thin film with good c-axis orientation.

Key words(중요용어) : Facing Targets Sputtering, plasma-free, c-axis orientation, grain size

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. [1-3]

따라서 이러한 특성을 갖는 ZnO 박막을 이용하여 광전 소자나 평판 표시 소자에 대한 투명 전도성 박막, 계기 패널에 대한 정전 방지 코팅, 압전 특성을 이용한 음향 광학소자(acousto-optical device), 음향-전자소자(acousto-electronic device), 고주파용 표면 탄성과 필터 등의 소자에 사용되고 있다.[4-5] 또한 ZnO는 그 성분 조성 및 제조 조건에 따라 저항률이 폭 넓게 변화하는 성질을 갖는데, 화학양론적인 조성을 갖는 벌크 상태의 ZnO는 원래 고저항체로서 최대 $10^{25}\Omega\text{cm}$ 까지의 저항률 값을 갖으며 이를 박막화 시키는 과정에서 Al, In 등과 같은 전도성 물질을 미량 첨가하게되면 투명 전도막으로서 이

용할 수 있는 저저항률이 쉽게 얻어질 수 있고, Li를 첨가하거나 반응성 스퍼터법을 이용하게되면 압전 소자로서 응용이 가능한 약 $10^{10}\Omega\text{cm}$ 의 고저항률을 갖는 막을 얻을 수가 있다.[6]

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 사용한 ZnO 막을 형성하는 경우 기판온도, 막 축적 속도, 기판의 배치 및 스퍼터 가스압 등의 스퍼터 조건이 c-축 배향에 영향을 미친다고 보고되고 있지만[7] 타겟에서 방출된 부의 산소 이온에 기인한 높은 에너지를 갖는 입자의 기판 충돌이 ZnO 막의 c-축 배향성을 열화 시키는 최대 원인이란 생각된다. 또한 스퍼터법에 의한 막의 증착은 플라즈마에 직접적으로 영향을 받는 공간상에서 증착이 이루어지며 타겟과 마주보는 위치에서 막을 증착하기 때문에 높은 에너지를 갖는 입자들의 충돌에 의한 막 손상은 피할 수가 없다.

이 경우 타겟 침식 패턴에 상응한 막의 성장이 기판상에서도 나타나게되어 c-축 배향이 양호한 막을 얻기 어렵게된다. 이 위치에서 c-축 배향성이 열화되기 때문에 이러한 문제점을 해결해야할 필요가 있

* : 경원대학교 공대 전기전자공학부
(성남시 수정구 북정동 산 65, Fax: 0342-750-5267
E-mail: khkim@main.kyungwon.ac.kr)
** : 신성대학 전기과

다.

따라서, 본 연구에서는 대향타겟식 스퍼터법을 사용하여 기판에 증착하는 산소 이온 입자의 최소화를 실현하여, ZnO 박막의 c-축 배향성을 우수하게 개선하고자 한다. 또한 FTS법에 의한 박막의 결정성 부여를 위하여 산소 가스압 변화가 c-축 배향성에 미치는 영향과 전기적 특성을 조사하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는, 그림 1과 같은 대향타겟식스퍼터 장치를 사용하여 ZnO 박막을 제작하였다.

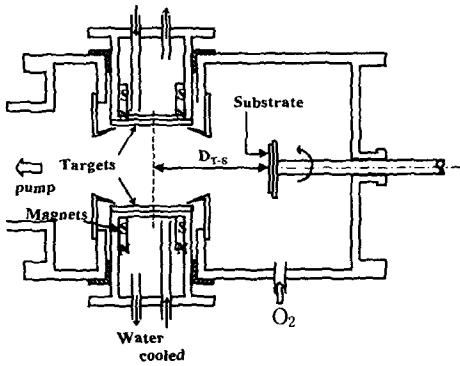


그림 1. 박막제작장치 개략도
Fig. 1 Schematic diagram of the FTS system

FTS 장치는 타겟을 음극으로, 쉘드링과 챔버는 양극으로 한다. 타겟 뒷면에 영구자석을 배치하여 타겟 면에 수직으로 자계를 형성시켜, 타겟 사이의 공간에 형성되는 플라즈마 내에 2차 전자를 구속하며, 기판은 플라즈마와 격리된 플라즈마-프리 상태에 배치한다. 따라서, 스퍼터링 시에 발생하는 2차 전자에 의한 기판 손상을 최소로 줄일 수 있으며, 또한 2차 전자의 왕복운동에 의해 가스 이온화에 촉진되어, 다양한 범위의 가스압력에서도 막을 증착 할 수 있는 특성을 가지고 있다.

본 실험에서는 직경 100mm의 Zn 디스크형 타겟을 사용하여 0.2 ~ 3mTorr의 산소 분위기에서 (111) Si 웨이퍼 표면 0.5 μ m를 산화시킨 기판 (SiO₂/Si) 위에 50~400nm의 ZnO 박막을 증착 하였으며, Background 압력은 8 \times 10⁻⁷Torr 이하로, 기판온도는 30 $^{\circ}$ C에서 550 $^{\circ}$ C까지 변화시켜 박막을 제작하였다.

제작된 ZnO 박막의 두께는 α -step를 이용하여 측정하였다. 또한 결정성에 미치는 기판온도, 막두스퍼터 가스압력의 영향을 확인하기 위해 XRD를 사용

rocking curve를 측정하여 반치폭 $\Delta\theta_{50}$ 을 조사하였으며, 2θ 를 측정하여 결정 입경 D를 확인하였다. 또한 4-point probe를 이용하여 증착된 막의 비저항을 측정하였다.

3. 결과 및 검토

3.1. 막두께에 따른 ZnO 박막의 c-축 배향성

그림 2은 제작된 ZnO 박막의 막두께 변화에 따른 결정성, 구조적 특성을 나타내고 있다. 결과에서 ● 심별과 ○심별은 기판온도 T_s=500 $^{\circ}$ C, 스퍼터 가스압 Po₂=3mTorr에서 제작된 ZnO 박막의 결정 입경과 반치폭을 나타낸다. 또한, ▲와 △는 기판온도 T_s=300 $^{\circ}$ C, 스퍼터 가스압 Po₂=0.5mTorr에서 제작된 ZnO 박막의 막두께를 50~500nm로 변화시켜 결정 입경과 반치폭을 조사한 결과이다.

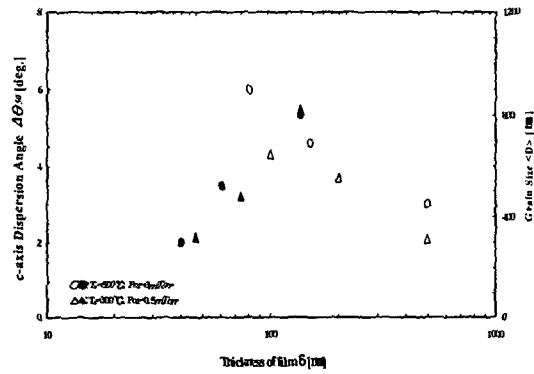


그림 2. c-축 배향 ZnO 박막의 $\Delta\theta_{50}$ 및 $\langle D \rangle$ 의 막 두께 δ 의존성

Fig. 2. Film Thickness δ dependence of $\Delta\theta_{50}$ and $\langle D \rangle$ of ZnO Thin Films with c-axis orientation

그림 2에 나타난 바와 같이, 박막의 두께가 증가함에 따라 c-축 배향성은 증가하는 경향을 보인다. 그러나 온도 증가에 따라 결정성이 양호해지 지는데 이는 기판 표면 온도가 증가하면 스퍼터된 원자가 기판 표면에서 이동할 수 있는 능력 즉 에너지적으로 안정한 위치를 찾아 갈 수 있게 되어 결정성이 좋아 지기때문인 것으로 사료된다.

3.2. 기판온도에 따른 ZnO 박막의 c-축 배향성

그림 3은 박막의 결정성에 미치는 기판온도 의존성을 나타낸다. 가스압 $P_{O_2}=3mTorr$, 막증착속도 $40\text{ \AA}/\text{min}$, 막두께 $\delta=500\text{nm}$ 의 제작 조건을 갖는 ZnO 박막의 $\Delta\theta_{50}$ 및 $\langle D \rangle$ 의 기판온도 의존성이다. 그림에서 확인 할 수 있는 바와 같이, 기판온도가 상승함에 따라, 반치폭은 250°C 이상에서는 거의 일정한 약 2.5 정도의 양호한 c-축 배향성을 확인 할 수 있다. 또한, 결정 입경 $\langle D \rangle$ 는 기판온도가 상승함에 따라 일정하게 증가하는 경향을 나타내고 있다. 그러나 고온에서(500°C) 증착된 막의 경우에는 c-축 배향성이 감소하는데 이는 증착된 입자가 표면에서의 재증발로 인한 것으로 사료된다. 이와 같은 결과로부터 기판온도가 상승함에 따라 ZnO 박막의 결정성장이 용이하게 발생한다는 사실을 알 수 있다.

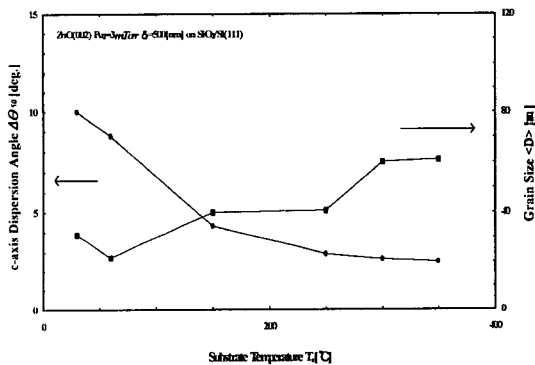


그림 3. c-축 배향 ZnO 박막의 $\Delta\theta_{50}$ 및 $\langle D \rangle$ 의 기판온도 T_s 의존성

Fig. 3. Substrate temperature T_s dependence of $\Delta\theta_{50}$ and $\langle D \rangle$ of ZnO Thin Films with c-axis orientation

3.3. 산소가스압에 따른 ZnO 박막의 c-축 배향성

제작된 ZnO 막은 기판온도 T_s 가 300°C 인 경우 P_{O_2} 가 $0.5mTorr$ 부근에서 $\Delta\theta_{50}$ 은 최소, $\langle D \rangle$ 는 최대 값을 나타내었다. 기판온도가 300°C 미만인 경우에는 $\Delta\theta_{50}$ 이 300°C 인 경우보다 큰 값을, $\langle D \rangle$ 는 작은 값을 나타내었다. 이는 결정입경이 최대인 경우 양호한 배향성을 갖는 박막을 얻을 수 있다는 사실을 나타내고 있다.

또한 c-축 격자상수는 산소 가스압 $0.5mTorr$ 인 경우, 파우더 형태의 ZnO에 비하여 조금 큰 5.22 정도를 나타냄을 확인하였다.

따라서, 대향타겟식 스퍼터법으로 제작된 박막은 분위기 가스압의 다양한 범위에서 큰 차이를 갖지

않는 결정성을 얻을 수 있다고 사료되며, 좀더 낮은 가스압에서 양호한 결정성, 구조적 특성을 갖는 ZnO 박막을 제작할 수 있다고 생각한다. 또한 c-축 배향성은 결정 입경의 증가에 따라 발생한 다고 할 수 있다. 제작 조건에서 가스압과 기판온도를 변화시킨 경우에 박막 두께를 변화시켜도 큰 결정성의 차이를 갖지 않는 사실로부터 대향타겟식 스퍼터법으로 제작된 박막은 c-축 배향성이 우수한 박막을 낮은 가스압 영역에서도 얻을 수 있으며, 필요한 두께의 박막을 제작할 수 있다고 사료된다.

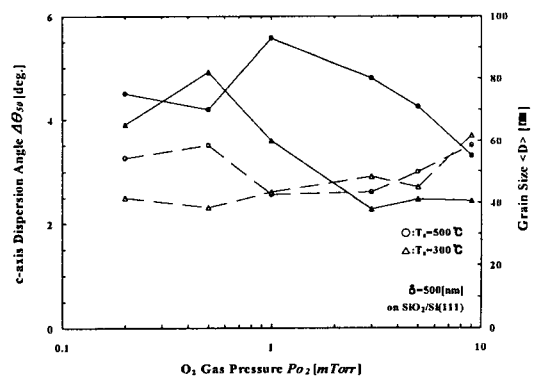


그림 4. c-축 배향 ZnO 박막의 $\Delta\theta_{50}$ 및 $\langle D \rangle$ 의 산소가스압력 P_{O_2} 의존성

Fig. 4. O_2 gas pressure P_{O_2} dependence of $\Delta\theta_{50}$ and $\langle D \rangle$ of ZnO Thin Films with c-axis orientation

3.4. 기판온도에 따른 ZnO 박막의 전기적 특성

본 연구에서 사용된 대향타겟식스퍼터법에 의해 불순물의 첨가없이 순 산소 가스만으로 ZnO 박막을 제작하여 특성을 조사하였다. 제작된 ZnO 박막의 전기적 특성은 4-point probe로 조사하였다.

제작된 ZnO 막은 막두께 1400 \AA , 기판온도 300°C 에서 $10^8\Omega\text{cm}$, 150°C 에서 $10^7\Omega\text{cm}$ 로 300°C 에서 제작된 박막이 가장 큰 비저항 값을 나타내었다.

4. 결론

대향타겟식스퍼터법에 의한 ZnO 박막 제작은 결과 산소 가스압, 기판온도의 제작 조건에서 가장 양호한 c-축 배향성을 얻을 수 있었다.

ZnO는 압전성을 유지하면서 박막화 할 수 있는 많지 않은 물질중의 하나로서 박막이 양호한 압전성을

가지려면 c-축이 기판상에 수직으로 배향되어야하고 그 편차가 6° 이하, 저항율은 $10^6 \Omega \text{cm}$ 이상이 요구된다. 따라서 본 연구에서 제작된 ZnO 박막은 이러한 요구에 적합한 특성을 갖는 것으로서 기존의 박막에 비하여 고품질의 막을 제작 할 수 있다고 생각되어진다. 또한 FTS 방식이 압전특성을 이용한 기능성 소자 제작과 결정성이 양호한 c-축 배향 ZnO 박막을 증착하는 방법으로서 유망하다는 사실을 확인하였다.

참 고 문 헌

1. Y.Igasaki and H.Saito, *J.Appl.Phys.*,70(1991)3613
2. F.S.Hickernell, *J.Appl.Phys.*,44(1973)1061
3. M.D.Ambersley and C.W.Pitt, *Thin Solid Films*, 80(1981)183
4. W.H.G.Horsthuis, *Thin Solid Films*, 137(1986) 185
5. T.Yamamoto, T.Shiosaki and A.Kawabata, *J.Appl.Phys.*, 51(1980)3113
6. 田畑三郎, “透明導電フィルムの製作と應用” シーエムシー, 1986
7. F.S.Jickernell, *IEEE Trans.Sonic Ultrason.*,vol. SU-32,621 (1985)