

기판온도 변화에 따른 ZnO:Al 투명 전도막의 특성 변화

A study on the properties of transparent conductive ZnO:Al films on variation substrate temperature

°양진석*, 성하윤*, 금민중*, 손인환**, 신성권***, 김경환*
(J.S.Yang*, H.Y.Seong*, M.J.Keum*, I.H.Son**, S.K.Shin***, K.H. Kim*)

Abstract

ZnO:Al thin film can be used as a transparent conducting oxide(TCO) which has low electric resistivity and high optical transmittance for the front electrode of amorphous silicon solar cells and display devices. This study of electrical, crystallographic and optical properties of Al doped ZnO thin films prepared by Facing Targets Sputtering(FTS), where strong internal magnets were contained in target holders to confine the plasma between the targets, is described. Optimal transmittance and resistivity was obtained by controlling flow rate of O₂ gas and substrate temperature. When the O₂ gas rate of 0.3 and substrate temperature 200°C, ZnO:Al thin film had strongly oriented c-axis and lower resistivity(10^{-4}Ω-cm).

Key Words : Facing Targets Sputtering, Solar cells, ZnO:Al, Transparent conducting oxide film

1. 서 론

ZnO박막은 대칭육방정계(hexagonal)구조를 가지는 II-VI족 화합물 반도체로서 결정 구조에서의 이방성, 비화학양론적 결합구조, 높은 굴절율과 압전 결합계수, 다양한 전기적, 광학적 그리고 탄성파적 성질 때문에 현재 여러 응용 분야에서 각광을 받고 있는 재료 중의 하나이다[1]. 특히 이러한 특성을 갖는 ZnO박막을 이용하여 광전소자나 평판표시 소자에 대한 투명 전도성 박막, 계기용 패널에 대한 정전방지코팅, 압전 특성을 이용한 광학소자, 표면 탄성파 필터 등의 소자에 사용되고 있

다[2]. 또한 ZnO박막은 그 성분 조성 및 제조 조건에 따라 비저항값이 변화하는 성질을 갖는데, 화학양론적인 조성을 갖는 벌크 상태의 ZnO박막은 본래 고저항체로서 최대 10^{25} Ω-cm까지의 비저항값을 갖으며, 이를 박막화 시키는 과정에서 Al, In, Si, F 등과 같은 전도성 물질을 도핑하게 되면 투명 전도막으로서 응용이 가능한 낮은 비저항의 특성을 얻을 수 있게된다[3]. ZnO투명전도막을 제작하는 방법에는 CVD법[4] 진공증착법[5], 스퍼터링법[6] 등이 있는데 주로 스퍼터링법이 많이 연구되고 있다. 스퍼터링법으로 ZnO투명전도막을 제작하는 경우 투입전력, 기판온도, 분위기 가스 압력, 산소분압비, 타겟간 거리 등의 증착조건에 의해 결정학적, 전기적, 광학적 특성이 영향을 받게 된다[7]. 그러므로 결정학적으로 양호하며 전기적, 광학적특성이 우수한 ZnO투명전도막을 제작하기 위해서는 최적의 증착조건을 확립할 필요가 있다.

따라서 본 연구에서는 증착시 낮은 온도와 스퍼

* : 경원대학교 전기전자공학과
(성남시 수정구 북정동 산65 경원대학교,
Fax : 031-750-5491
E-mail: khkim@mail.kyungwon.ac.kr)

** : 신성대학 전기과

*** : 동해대학교 정보통신공학과

터 가스압력에서도 방전이 가능한 대향타겟식스퍼터법[8]을 이용하여 기관온도가 ZnO:Al박막의 결정학적, 광학적, 전기적 특성에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 FTS(Facing Targets System)장치를 이용하여 ZnO:Al박막을 제작하였다. 대향타겟식 스퍼터링 장치는 타겟 뒷면에 Nd계 영구자석이 장착되어 타겟 표면에 수직으로 자계가 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 방전을 유지할 수 있다.

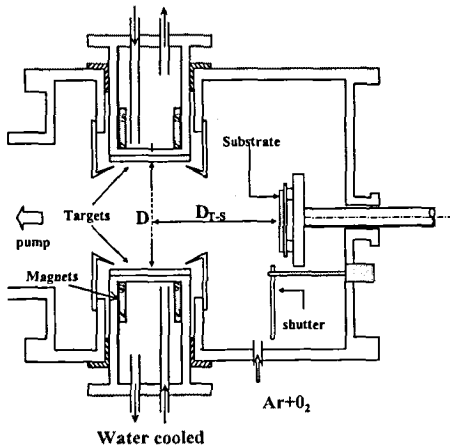


그림 1. 대향타겟식 스퍼터링 장치 개략도
Fig. 1. Schematic diagram of the FTS apparatus

본 실험에서는 직경 100mm인 Zn(4N)금속타겟을 상부에, ZnO:Al(2wt%)세라믹타겟을 하부에 장착하였다. 이때 타겟간 거리는 100mm, 타겟간 중심축과 기관의 이격거리 100mm로 고정하였다. 온도 변화에 따른 ZnO:Al박막의 특성변화를 조사하기 위해 기관온도를 상온과 200°C로 변화시켰다. 스퍼터링 가스로는 아르곤과 산소의 혼합 가스를 사용하였으며 산소가스 유량비(O_2/O_2+Ar)를 0.1~0.5의 범위로 변화시켰다. 실험조건은 표 1에 나타내었다. 각 증착조건에서 제작된 ZnO:Al박막의 두께는 alpha

-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

Table 1. Sputtering condition

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
Applied current	0.6A

3. 결과

3.1 기관온도 변화에 따른 ZnO:Al박막의 증착률

그림 2는 투입전류 0.6A, 가스압력 1mTorr의 조건을 고정하였을 때 기관온도에 따른 ZnO:Al박막의 증착률을 나타낸 것이다. 기관온도 200°C일때의 증착률은 실온에서의 증착률과 비교해봤을 때 전반적으로 높은 증착률을 나타냈다.

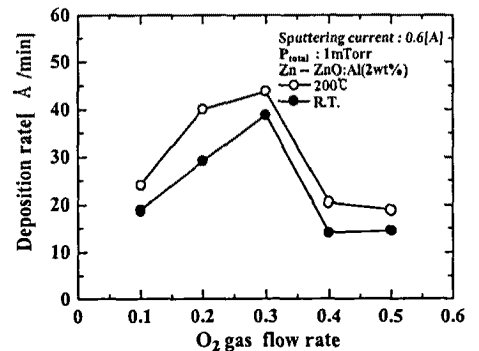


그림 2. 기관온도에 따른 증착률
Fig. 2. Deposition rate on substrate temperature

3.2 기판온도 변화에 따른 ZnO:Al박막의 비저항

기판온도를 200℃로 증가시킨 경우, 실온에서와 마찬가지로 산소 유량비가 증가할수록 비저항 값이 높아지는 것을 확인할 수 있었다. 특히 기판 온도 200℃에서는 plasma내에 여기된 산소화합종이 증가되면서 증착된 전도막의 grain boundary나 표면에 결합되어 acceptor 준위밀도를 높하게 된다. 결과적으로 n형 반도체인 미결정립 사이에 공핍층이 폭넓게 생겨 비저항이 급격히 상승하는 것으로 사료된다. 기판온도 200℃일 때 산소유량비 0.3에서 $5.8 \times 10^{-5} \Omega\text{-cm}$ 의 가장 낮은 비저항 값을 가졌다.

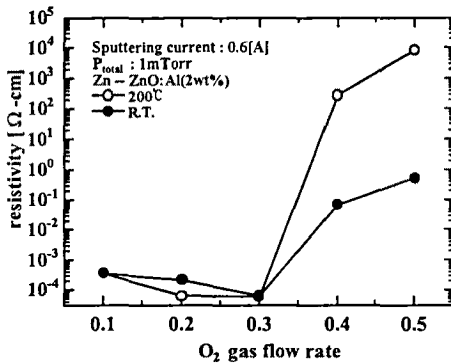


그림 3. 기판온도에 따른 비저항

Fig. 3. Resistivity on substrate temperature

3.3 기판온도 변화에 따른 ZnO:Al박막의 결정성

그림 4와 5는 기판온도 R.T., 200℃에서 제작한 ZnO:Al박막의 XRD패턴이다. 기판온도 R.T., 200℃일 때, 산소가스 유량비 0.3에서 제작된 ZnO:Al박막은 다른 산소가스 유량비에서 제작된 ZnO:Al박막의 (002)면 intensity가 약하거나 (100)과 (110)면을 나타내는 것과는 달리, (002)면의 에피택셜 성장이 이루어졌음을 확인할 수 있었다. 그러나 기판온도 R.T.,에서는 에피택셜 성장에 필요한 에너지가 충분히 공급되지 않기 때문에 기판온도 200℃일 때 제작된 ZnO:Al박막의 XRD 패턴에 비해 전반적으로 peak intensity가 약하게 나타났다. 기판온도 200℃일 경우, 산소가스 유량비 0.1, ~0.3에서의 ZnO:Al박막의 (002)면 peak가 실온에서 증착한 박막의 경우보다 크게 나타나는 것을 관찰할 수 있었다. 이것은 기판온도가 200℃일 경우 기판

표면 원자의 이동도가 증가하여 에너지적으로 안정한 위치로 원자가 자리잡을 수 있기 때문에 결정학적 특성이 개선된 것으로 사료된다.

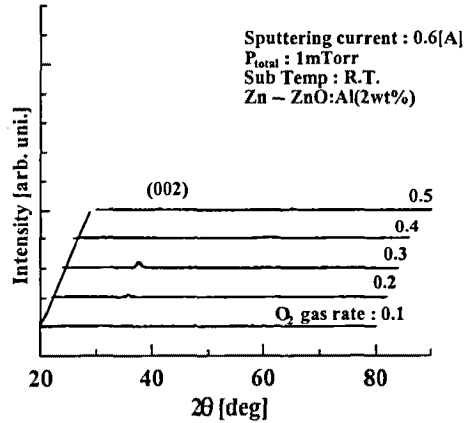


그림 4. 기판온도 R.T.일 때의 X 선 회절 패턴

Fig. 4. X-ray diffraction patterns of Sub Temp R.T.

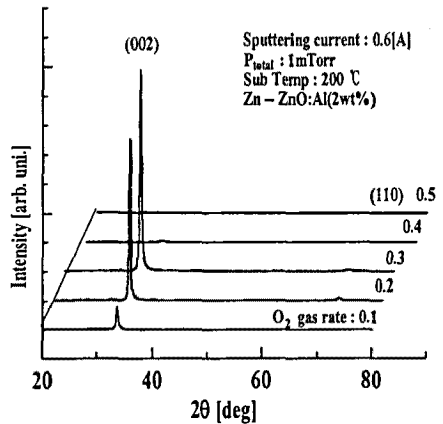


그림 5. 기판온도 200℃일 때의 X 선 회절 패턴

Fig. 5. X-ray diffraction patterns at Sub Temp 200℃

3.4 기판온도 변화에 따른 ZnO:Al박막의 광투과율

그림 6와 7은 기판온도 R.T., 200℃에서 제작한

ZnO:Al박막의 wavelength 300~800nm에서의 광투과율이다. 기판온도 200℃일 경우 R.T.와 비교해왔을 때, 전반적으로 투과율이 개선됨을 확인할 수 있었으며 가시광 영역에서 모두 80% 이상의 투과율을 가졌다.

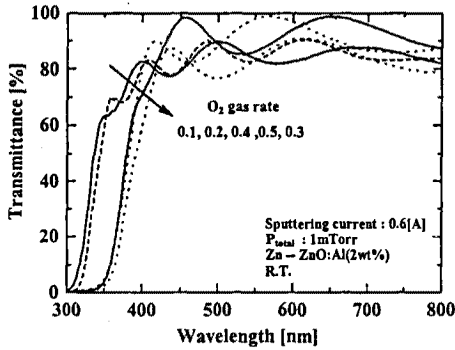


그림 6. 기판온도 R.T.일 때의 광투과율
Fig. 6. Transmittance at Sub Temp R.T.

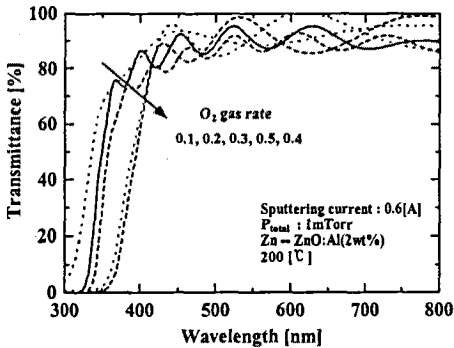


그림 7. 기판온도 200℃일 때의 광투과율
Fig. 7. Transmittance at Sub Temp 200℃

4. 결론

FTS장치를 사용하여 상부에는 Zn(99.99%) 금속 타겟과 하부에는 ZnO:Al(2wt%) 세라믹 타겟을 장착하여 slide glass 기판위에 산소와 아르곤 혼합 가스를 이용하여 ZnO:Al박막을 제작하였다. 기판온도 R.T.와 200℃, 투입전류 0.6A, 산소 가스 유량비 0.1~0.9에서 ZnO:Al박막을 제작하였으며, 산소가스 유량비 0.3, 기판온도 200℃에서 비저항

$10^{-4}\Omega\text{-cm}$ 이하, 2θ 가 34.42° 에 존재하는 (002)면으로 우선 배향된 ZnO:Al투명전도막을 제작하였다. 이때 광학적 특성은 가시광선 영역에서 평균 투과율 80% 이상으로 투명전도막 조건에 부합되는 양질의 ZnO:Al투명전도막을 제작할 수 있음을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 한국전력 공사의 지원에 의하여 기초 전력공학공동연구소 주관[관리과제번호 : 00-006호]으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] Y. Igasaki and H. Saito, J. Apply. Phys., 70, 3613, 1991
- [2] F. S. Hickernell, J. Appl. Phys., 44, 1061, 1973
- [3] M. D. Ambersley and, J. Appl. Phys., 44, 1061, 1981
- [4] M. Labeau, P. Rey, J. L. Deschanvres, J.C. Joubert and G. Delabougliuse, Thin Solid Films, Vol.213, pp.94-98, 1992
- [5] Masaru Shimizu, Yoojiro Matsueda, Tadashi Shiosaki and Akira Kawabata, J. of Crystal Growth, 71, 209, 1991
- [6] K. Ellmer, R. Cebulla, R. Wendt, Thin Solid Films, Vol.317, pp.413-416, 1998
- [7] Takashi Tsuji, Mitsuji Hirohashi, Applied Surface Science 157, pp.47-51, 2000
- [8] 綜合技術資料集, Sputta法にする薄膜技術, 經營開發センター出版部, pp82-91, 1985