

# ZnO 저온 성장 버퍼에 의한 ZnO 박막의 특성 향상

## Improvement of the characteristics of ZnO thin films using ZnO buffer layer

방성식, 강정석, 강홍성, 심은섭, 이상렬.

(Seong Sik Pang, Jeong Seok Kang, Hong Seong Kang, Eun Sub Shim, and Sang Yeol Lee)

### Abstract

The effect of low-temperature ZnO buffer layer has been investigated for the optical properties of ZnO thin films. ZnO buffers and thin films have been deposited using the pulsed laser deposition technique. ZnO buffer layers were grown at 200°C with various thickness of 0 to 60 nm, followed by raising the substrate temperature to 400°C to grow 2 μm ZnO thin films. The buffer layers could relax stresses induced by the lattice mismatch and different thermal expansion coefficients between ZnO thin films and sapphire substrate. In order to identify the optical properties of ZnO thin films, PL measurement was used. From the results of PL measurement, all the fabricated ZnO thin films with buffer layers have shown intensive UV emission with a narrow linewidth. ZnO thin films with buffer layer of 20 nm have shown the strongest UV emission. It was found that the use of ZnO buffer layer plays an important role to improve the intensive UV emission of the ZnO thin films.

**Key Words** : ZnO, Pulsed laser deposition, ZnO buffer, UV emission

### 1. 서 론

ZnO 여러 가지 유용한 전기적, 광학적 특성으로 인해 많은 분야에서의 응용이 기대되고 있는 물질로서 특히 최근 레이저 다이오드(LD)나 가시광 LED에 대해 많은 연구가 진행 중이며, 많은 가능성이 제시되고 있다[1]. 이러한 응용을 위해 결정성과 화학 양론이 우수한 박막의 제작이 요구되어지고 있다. 광대역 반도체 ZnO는 3.37 eV의 밴드갭으로 인해 UV 영역에서의 발광 특성을 보이지만, 보통 산소의 부족이나 Zn의 과잉으로 인해 n형 반도체의 특성을 보이며 가시광 영역에서의 발광도 관찰된다[2,3].

현재 많은 연구가 이루어지고 있는 ZnO LED와 LD 개발에 있어서 스트레스가 적고 화학 조성이

우수한 박막의 제작은 이중접합이나 동종접합 연구보다 선행되어야 할 중요한 과제이다. 기존에 기관에 따른 박막의 구조적, 광학적 특성 등에 대해서는 많은 연구가 이루어졌으나[4,5], ZnO 버퍼를 이용한 ZnO 박막의 특성 향상에 대해서는 보고되어진 연구 결과가 거의 없다. 본 논문에서는 사파이어 기관 위에 ZnO 저온 성장 버퍼를 증착하여 버퍼의 두께에 따른 ZnO 박막의 광학적, 전기적 특성 변화를 고찰하였다.

### 2. 실험

ZnO 박막은 PLD법에 의해 (001) 사파이어 기관 위에 증착하였다. 사용된 레이저는 Nd:YAG laser 이고, 파장은 355 nm를 사용하였다. 챔버 내의 초기 진공은 터보 펌프를 이용하여 10<sup>-6</sup> Torr까지 만들었으며, 먼저 ZnO 저온 성장 버퍼를 기관 온도 200°C에서 증착한 후 기관 온도를 400°C로 올린

---

연세대학교 전기전자공학과  
(서울특별시 신촌동 연세대학교,  
Fax: 02-364-9770  
E-mail : sylee@yonsei.ac.kr)

후 2 $\mu$ m 두께의 ZnO 박막을 증착하였다. 일반적으로 ZnO 박막의 발광 특성은 박막의 화학양론적인 결합과 박막내의 결합에 의존하는 것으로 알려져 있다[3]. 본 실험에서도 증착된 박막의 광학적 특성으로부터 박막의 결합 상태와 결합 등을 살펴 보기 위해 PL (photoluminescence) 측정을 하였다. PL 분석은 UV 발광 세기의 FWHM(full width at half maximum)과 가시광과 자외선 세기 강도를 비교하였다. PL 분석은 351 nm(3.53 eV)의 파장을 갖는 Ar-ion laser의 광원을 사용하여 측정하였다.

ZnO의 캐리어 농도는 박막 자체의 산소 공공(oxygen vacancy)이나 과다 아연(zinc interstitial)에 의한 것으로 알려져 있으며, 캐리어 농도와 저항율은 서로 반비례하는 것으로 생각할 수 있다[8]. 저항율을 측정하기 위하여 van der Pauw법을 사용하였다.

### 3. 결과 및 고찰

증착한 ZnO 박막의 광학적 특성을 살펴보기 위해 그림 1과 같이 PL을 측정하였다. ZnO는 일반적으로 강한 엑시톤의 결합력으로 인해 상온에서도 엑시톤에 의한 발광이 우세한 것으로 알려져 있다[6].

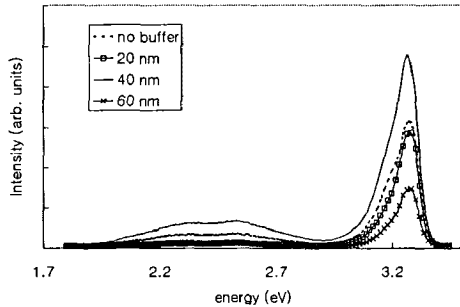


그림 1. 버퍼 두께에 따른 ZnO 박막의 PL 스펙트럼

Fig. 1. PL spectra of ZnO thin film as a function of buffer layer thickness.

또한 박막 내의 자연적인 결합에 의해 가시광 영역의 발광 현상을 관찰할 수 있다. 따라서 일반적으로 결합이 적은 박막에서 보다 강한 UV 발광 현상을 관찰할 수 있으며, 또한 좁은 FWHM 값을 갖는 것으로 알려져 있다. 그림에서 보는 바와 같

이 버퍼의 두께에 따라 UV 세기가 변하며, 또한 가시광의 세기가 변하는 것을 관찰할 수 있다. 그림에서 보는 바와 같이 증착한 모든 박막은 3.26 eV에서 강한 UV peak이 관찰되었다. 이러한 값은 일반적으로 상온에서 자유 엑시톤에 의한 ZnO의 에너지 밴드 갭으로 보고 되어진 3.26 eV[6]와 일치하는 결과를 얻었다.

표 1은 UV와 가시광 세기의 비와 UV peak의 FWHM을 나타낸 것이다. 표에서 보는 것처럼 ZnO 버퍼의 두께가 20 nm일 때 UV peak의 FWHM과 UV와 가시광의 비가 눈의 띄게 향상된 것을 확인할 수 있다. 그러나, 버퍼의 두께가 40 nm로 증가하면 다시 UV의 광학적 특성이 나빠지는 것을 확인할 수 있다. 이는 버퍼가 두꺼워지면서 버퍼로서의 기능을 상실한 것으로 예측할 수가 있다. ZnO와 비슷한 특성을 가지고 있는 GaN의 경우에서도 버퍼의 두께가 두꺼워지면서 박막의 특성이 저하되는 경우가 이미 보고되어진 바가 있다[7].

표 1. 버퍼 두께에 따른 ZnO 박막의 PL spectra 분석.

Table. 1. The characteristics of PL spectra of ZnO thin films with various buffer thickness.

버퍼 두께(nm)	FWHM (eV)	UV/가시광
No buffer	0.146	8.79
20	0.110	21.75
40	0.145	7.17
60	0.118	10.65

버퍼로 인해 박막의 광학적 특성이 향상되는 이유는 버퍼가 박막과 기판 사이의 격자 부정합을 완화하여 스트레스를 줄이기 때문으로 사려된다. 스트레스가 완화되면서 박막이 화학양론적으로 결합하면서 결합에 의한 가시광 발광이 줄어들고 UV 발광의 세기가 증가한 것으로 설명할 수 있다. 버퍼의 두께가 증가하면서 박막의 광학적 특성이 저하되는 이유는 버퍼의 두께가 증가하면서 버퍼의 기능을 상실하는 것으로 설명할 수 있다. 본 연구에서 사용된 ZnO 버퍼는 저온 성장 버퍼로서 200 $^{\circ}$ C에서 증착되었다. 따라서, 버퍼의 두께가 두꺼워질수록 결정을 이루는데 필요한 에너지가 부

족하여 제대로 결정성을 이루지 못할 것으로 예측할 수 있다. 따라서, 결정성을 가지지 못한 버퍼 위에 성장하는 박막은 기판에 직접 증착하여 스트레스를 받고 자라는 박막과 비슷한 광학적 특성을 보이는 것이다.

GaN의 경우 일반적으로 보다 좋은 결정성을 얻기 위해 사용하는 버퍼가 10에서 20 nm로 알려져 있다[7]. 이러한 연구 결과를 바탕으로 본 연구에서도 보다 버퍼의 두께를 세분화하여 실험을 수행하였다. 다음 그림은 버퍼의 두께를 10 nm에서 40 nm까지 10 nm 단위로 세분화하여 증착한 박막의 저항율을 나타낸 것이다.

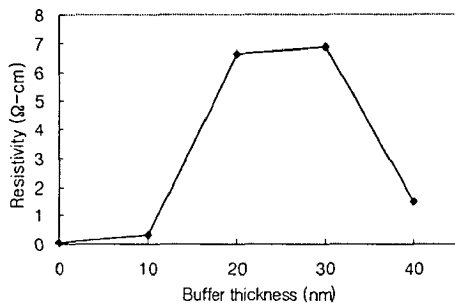


그림 2. 버퍼 두께에 따른 ZnO 박막의 비저항  
Fig. 1. Resistivity of ZnO thin film as a function of buffer layer thickness.

그림에서 보는 바와 같이 20, 30 nm에서 가장 저항율이 큰 것을 확인할 수 있다. 이는 버퍼를 사용하지 않았을 경우보다 약 200배 이상 큰 값이다. 앞서도 언급했던 것처럼 저항율은 박막 내의 산소 부족이나 과다 아연과 같은 결함에 반비례한다. 즉, 버퍼의 두께가 20, 30 nm일 때 박막 내의 결함이 적은 것을 알 수 있다. 이는 앞서 설명한 PL 결과와도 일치한다. 또한, 세분화한 버퍼의 두께를 갖는 박막에서도 PL을 측정할 결과 버퍼의 두께가 20 nm에서 30 nm에서보다 우수한 UV 발광의 특성을 얻었다. 이러한 결과를 바탕으로 ZnO의 광학적 특성을 향상시키기 위한 ZnO 저온 성장의 두께는 버퍼의 두께가 20 nm라는 결과를 얻었다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 PLD 법에 의해 ZnO 저온 성장을 통한 ZnO 박막의 광학적 특성을 향상시켰다.

ZnO 저온 성장 버퍼는 기판과 박막 사이의 스트레스를 줄임으로써 박막이 성장하는데 있어 보다 화학양론적으로 성장하여 ZnO가 일반적으로 가지고 있는 산소 공공이나 과다 아연을 최대한 억제시키는 역할을 하는 것으로 사려된다. 이러한 버퍼는 적절한 두께에서 박막의 광학적 특성을 향상시킬 수 있는 것으로 관찰되었다.

#### 감사의 글

이 논문은 2001년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구 되었음 (KRF-2001-041-E00152)

#### 참고 문헌

- [1] D. M. Bagnall, Y. F. Chen, M. Y. Shen, Z. Zhu, T. Goto, and T. Yao, "Room temperature excitonic stimulated emission from zinc oxide epilayers grown by plasma-assisted MBE", *Journal of Crystal Growth*, Vol. 184/185, p. 605, 1998.
- [2] X. L. Wu, G. G. Siu, C. L. Fu, and H. C. Ong, "Photoluminescence and cathodoluminescence studies of stoichiometric and oxygen-deficient ZnO films", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 78, No. 16, p. 2285, 2001.
- [3] S. H. Bae, S. Y. Lee, H. Y. Kim, and S. Im, "Effects of post-annealing treatment on the light emission properties of ZnO thin films on Si", *Optical Materials*, Vol. 17, p. 327, 2001.
- [4] Z. Zhaochun, H. Baibiao, Y. Yongqin, and C. Deliang, "Electrical properties and Raman spectra of undoped and Al-doped ZnO thin films by metalorganic vapor phase epitaxy", *Materials Science and Engineering B*, Vol. 86, p. 109, 2001.
- [5] V. Srikant, and D. R. Clarke, "Optical absorption edge of ZnO thin films: The effect of substrate", *J. Appl. Phys.*, Vol. 81, No. 9, p.6357, 1997.
- [6] H. C. Ong, A. S. K. Li, and G. T. Du, "Depth profiling of ZnO thin films by cathodoluminescence", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 78, No. 18, p. 2667, 2001.
- [7] C.-C. Yang, M.-C. Wu, and G.-C. Chi, "

Improvement of GaN layer quality by using the bulk-GaN buffer structure grown by metalorganic chemical vapor deposition", J. Appl. Phys., Vol. 86, No. 11, p. 6120, 1999.

- [8] A. Suzuki, T. Matsushita, T. Aoki, Y. Yonemada, and M. Okuda, "Micro-textured milky ZnO:Ga thin films fabricated by pulsed laser deposition using second-harmonic-generation of Nd:YAG laser" , Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, p. L71, 1999.