

사파이어기판 상의 ZnO 박막 성장에 관한 연구

이용의 · 김형준 · 양형국* · 박종철* · 김유택** · 김영진**

서울대 무기재료공학과

*전자부품종합기술연구소

**경기대학교 재료공학과

A Study on the Growth of ZnO Thin Films Deposited on the Sapphire Substrates

Y. E. Lee, H. J. Kim, H. K. Yang*, J. C. Park*, Y. T. Kim**, Y. J. Kim**

Dept. of Inorg. Sci. and Eng., Seoul National Univ, Seoul 151-742

*Korea Electronic Technology Institute, Kyonggi-Do 451-860

**Dept. of Mat. Sci. Eng., Kyonggi Univ., Suwon 442-760

초 록 R-sapphire 기판위에 rf magnetron 스퍼터 방법으로 ZnO 박막을 증착하여 박막의 증착변수에 따른 결정성장방향과 SAW 특성을 분석하였다. 증착온도, 압력, rf전력에 의해 박막 성장면이 (002)에서 (110)으로의 전이가 관찰되었다. 5mTorr, 400°C, 250W의 rf 전력에서 가장 우수한 (110) 방향의 에피 ZnO 박막이 성장되었으며 이 박막의 X-ray rocking curve의 σ 값은 최소 0.5도의 우수한 특성을 보이고 있었다. ZnO 압전 박막의 SAW 특성을 분석하기 위하여 제작된 마스크를 사용하여 IDT를 구성한 후 SAW 특성을 분석한 결과 $h/\lambda=0.08$ 의 조건에서 전단속도가 약 5232 m/s로서 고주파용 SAW 필터의 제조에 적합한 특성을 보이고 있다.

Abstract ZnO thin films were deposited on R-plane sapphire substrates by rf magnetron sputter, and the structural changes and SAW properties were analyzed according to the deposition variables. By varying the substrates temperature, chamber pressure and rf power, growing planes of ZnO thin films were transformed from (002) to (110). Under the deposition conditions of 5mTorr, 400°C and 250W, (110) epitaxial ZnO thin films were deposited, whose minimum σ of X-ray rocking curve was 0.5 degree.

SAW velocity of this epitaxial ZnO thin film on R-plane sapphire substrated was 5232 m/s at the h/λ ratio of 0.08, which is appropriate to the high frequency SAW filters.

1. 서 론

세계적으로 국가적인 관심사가 되고 있는 정보통신 산업의 급격한 발달과 더불어, 최근 이동통신산업이 각광을 받기 시작하여 시스템 및 부품의 개발이 급진전을 이루고 있다. 특히 이동통신용 고주파 부품 중의 핵심 부품인 표면탄성과(Surface acoustic wave, SAW)필터는 그 중요도가 매우 높게 인식되고 있는 부품이다. 고주파용 표면탄성과 필터의 경우 압전 단결정기판을 사용한 기술에 관한 연구와 저 삽입손실에 적합한 박막형 압전재료를 이

용한 SAW 필터에 대한 연구가 병행되고 있다.

대표적인 박막형 압전 박막은 ZnO 박막으로서 종래에는 유리기판 위에 다결정 형태로 성장 시켜서 VHF 대역의 SAW 필터에 사용해왔으나 900MHz 대역 이상 특히 GHz에서는 박막의 특성상 적용시키기가 어렵다. 따라서 막질의 향상을 위해서 ZnO 압전 박막을 사파이어 같은 단결정 기판 위에 에피 성장을 시키는 것이 연구되어 왔다. GHz영역에서 저손실, 광대역 SAW필터를 만들기 위해서 일반적으로 많이 사용되고 있는 SAW필터용 기

판으로는 36° Y-X LiTaO₃¹⁾ 등이 많이 사용되고 있다. 그러나 이러한 기관들은 높은 기계 결합계수(k^2)를 갖고, 높은 전단속도(V_p)를 갖고 있으나, 이용되는 파의 모드가 leaky SAW이거나 surface skimming bulk wave (SSBW)이므로 Rayleigh파 보다 높은 감쇄상수를 갖고 있다. 따라서 이러한 기관들을 사용하는 필터들은 원천적인 전단손실이 있다. 따라서 좀더 좋은 삽입손실 특성을 얻기 위해서 ZnO/사파이어 구조를 갖는 필터를 이용하기도 한다²⁾. ZnO 압전박막은 R-면과 C-면 사파이어 기관상에서 스퍼터³⁻⁶⁾나 화학기상증착법⁷⁻¹¹⁾에 의하여 모두 에피성장이가 가능하나 (11 $\bar{2}$ 0)ZnO/(01 $\bar{1}$ 2) Al₂O₃경우가 (0001)ZnO/(0001)Al₂O₃보다 높은 k^2 값을 갖고 있기 때문에 전자의 경우가 SAW필터 특성상 유리하다. 이 경우 소자의 특성을 보면 첫째, ZnO 압전박막을 R-면 사파이어 기관위에서 에피 성장을 시키고, 작은 감쇄 상수값을 갖는 Sezawa파를, 사용하며, 둘째, interdigitated IDT(IIDT) 전극¹²⁾과 외부 반사기(reflectors)를 채택하여 bidirectionality를 감소시키도록 하는 것을 특징으로 한다.

본 논문에서는 사파이어 기관 상에서의 스퍼터법에 의한 ZnO 박막의 증착 특성에 관한 분석을 한 후, 고품질의 ZnO 압전 박막을 이용하여 SAW 특성을 분석하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 R-면 사파이어 기관위에 박막을 제조하였다. 이때 타겟과 기관과의 거리를 4-6cm로 변화시켰으며, 타겟으로는 지름 6 in.의 ZnO(고순도 화학연구소, 5N) 소결체를 사용하였으며, 초기 진공을 5×10^{-7} 로 유지시킨 후 Ar/O₂의 혼합가스를 챔버내로 주입시켰다. 이때 O₂의 조성비는 0%~75%로 변화시켰으며, 박막 증착시 진공도는 5-50 mTorr로 변화시키면서 행하였다. 기관의 온도는 25°C~300°C로, RF 전력은 100~500W로 변화시켰다.

증착된 박막의 결정학적 특성을 알아보기 위하여 XRD분석을 하였다. 사용한 X-ray는 CuK α 선으로 파장은 1.5406 Å이며 분석 조건은 35KeV, 20mA에서 주사속도 4°/min로 하

고, 2θ 는 30~75°로 하였다. 증착된 박막의 표면형상을 분석하기 위해서 SEM 분석을 행하였다. 증착속도는 박막의 두께를 stylus profiler로 구한 후, 이 값을 증착시간으로 나누어서 계산하는 방식을 택하였다.

실험에 사용된 에칭 마스크의 디자인 사양은 Table.1과 같다. IDT의 제작은 사파이어 기관 위에 ZnO 박막을 증착 한 후에 스퍼터링 법에 의하여 Al 박막을 약 1200 Å 정도 증착을 하고, 일반적인 식각 공정에 의하여 Al 박막을 건식식각법으로 ZnO 박막에 손상을 주지 않고, 패턴 제작을 할 수 있었다. 다음에 network analyzer로서 주파수 특성을 분석하고 전단 속도와 삽입손실을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 온도, 압력의 변화에 따른 사파이어 기관상에서 성장한 ZnO 박막의 XRD 패턴이다. 각각의 경우를 비교해보면 증착조건에 따른 ZnO 박막의 성장방향이 뚜렷이 다를 수 있다. 일반적으로 보고된 바에 의하면¹²⁾ R-sapphire상에서는 (110) ZnO 박막이 에피 성장을 하는 것이 알려져 있다. 그러나 (a), (b)에서와 같이 10mTorr 하에서는 300°C까지도 R-면 사파이어 기관을 사용했음에도 불구하고 유리 기관에서와 같이 self texturing effect에 의하여 온도의 증가에 관계없이 c축 배향성을 가진 박막으로 성장된 것을 관찰할 수 있었다. 그러나 (c)와 같이 압력을 5mTorr로 낮춤에 따라서 (002) 피크는 급격히 줄어들고 (110) 피크가 두드러지게 커짐을 볼 수 있다. 위 결과로 보아 챔버의 압력 변화는 R-면 사파이어 기관상에서 ZnO 박막의 성장 방향에 결정적인 영향을 주고 있음을 알 수 있는데, 이에 대한 이유로는 다음과 같이 유추할 수 있다. ZnO 박막이 R-면 사파이

Table 1. IDT design spec.

Items	spec.
λ (wave length)	24 μ m
Aperture	100 λ
Center to center distance	150 λ
# of pairs	50
IDT width	3 μ m

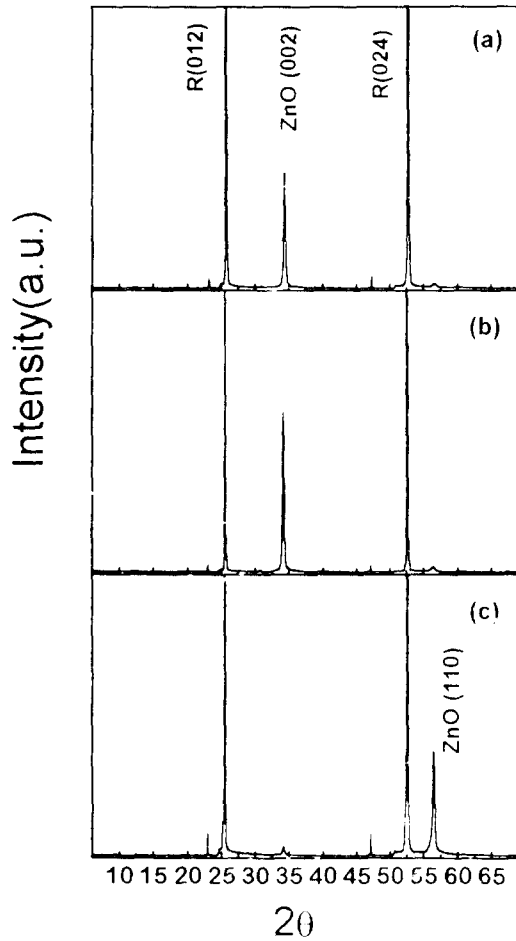


Fig. 1. Variation of XRD patterns of ZnO thin films with temperature and pressure: (a) 10mTorr, 200°C (b) 10mTorr, 300°C and (c) 5mTorr, 300°C, (rf=300W, Ar/O₂=50/50).

어 기판상에서 (110)면으로 에피 성장을 하기 위해서는 여러 조건이 있겠으나 그 중에서도 원자의 배열에 결정적 역할을 하는 에너지 공급 측면을 고려해 볼 수 있다. 이 에너지는 주로 기판온도에 의한 열에너지에 의해서 공급되어 지는데, 스퍼터 같은 플라즈마 증착법에서는 기판온도에 의한 열에너지 외에도 기판에 도달하는 입자의 운동에너지가 추가로 주요한 에너지 공급원이 된다. Fig. 1의 (b)와 (c)를 비교해보면 같은 기판온도에서도 챔버의 압력에 따라서 전혀 다른 형태의 박막이 성장하고 있다. 이는 (b)와 같이 10mTorr에서는 (c)의 5mTorr에서 보다 압력이 높으므로 기판에 도달하는 입자가 더 많은 충돌에

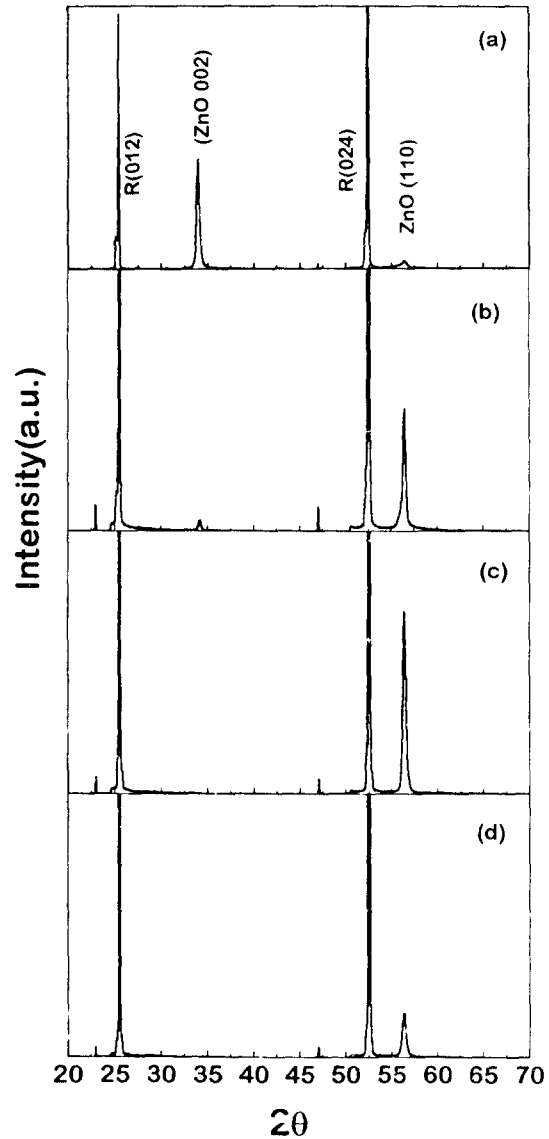


Fig. 2. Variation of XRD patterns of ZnO thin films with a substrate temperature: (a) 200°C, (b) 300°C, (c) 400°C and (d) 450°C, (rf=300W, Ar/O₂=50/50).

의한 산란을 거쳐서 오기 때문에 상대적으로 낮은 운동에너지를 갖고 있게 된다. 이를 확인하기 위한 간접적인 방법으로 증착 속도를 측정하면 알 수 있는데, 전자의 경우가 후자에 비해 상대적으로 낮은 증착 속도를 보이고 있다. 따라서 같은 기판온도라도 (c)의 경우가 (b)보다는 더 큰 운동에너지를 갖는 도달 입자들에 의해서 에피 성장에 필요한 여분의 충분한 에너지를 공급받게 된 것이다. 그리고

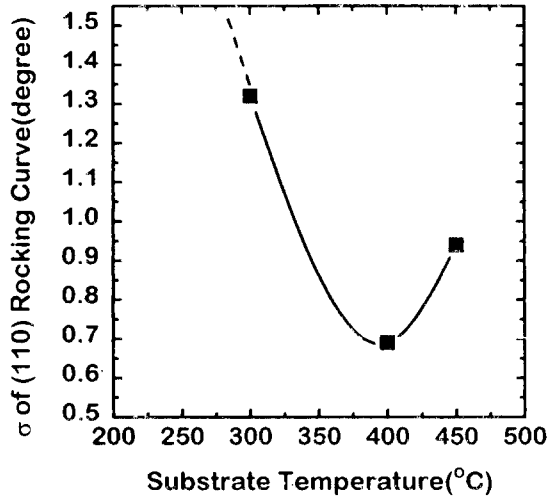


Fig. 3. Variation of standard deviation of (110) rocking curve.

(a)와 (b)의 경우는 에피성장을 위한 원자배열에 필요한 에너지가 충분히 공급되지 않았기 때문에 사파이어 기판의 표면 구조에 관계없이 유리기판을 사용할 때와 같이¹³⁾ ZnO의 최밀면인 (002)면으로 성장하게 된 것이다.

다음에는 적정 압력 조건인 5mTorr에서 온도를 변화시키면서 박막의 결정 구조의 변화를 관찰하였다. Fig. 2는 rf 전력 300W에서의 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 XRD 결과이다. 그림에서와 같이 낮은 온도에서는 에피성장에 필요한 에너지가 충분히 공급되지 않기 때문에 전술한 바와 같이 R-면 사파이어 기판과 무관한 (002) 최밀면 방향으로 성장하다가, 온도가 증가함에 따라서 (002) 피크가 약해지고 (110) 피크가 뚜렷해지기 시작하여 400°C에서는 (002) 피크가 나오지 않는 ZnO 박막을 얻을 수가 있었다. 이는 온도 증가에 따라서 박막이 에피 성장을 할 수 있도록 충분한 열 에너지가 공급되었기 때문이다. 그러나 450°C가 되면 오히려 ZnO 박막의 결정성이 퇴화되고 있음을 볼 수 있는데, 이는 Fig. 3의 X-ray rocking curve 결과에서도 동일한 현상이 관찰되고 있다. 이러한 결과는 과잉의 온도가 기판에 공급되어 원자의 배열에 에너지가 사용되기 보다는 오히려 원자간의 결합 파괴, 재취발 등을 유발시켰기 때문이다. 앞의 두 가지 결과로부터 적정 압력과 온도를 결정할 수 있었으며, 마지막으로 이 두 조건하에

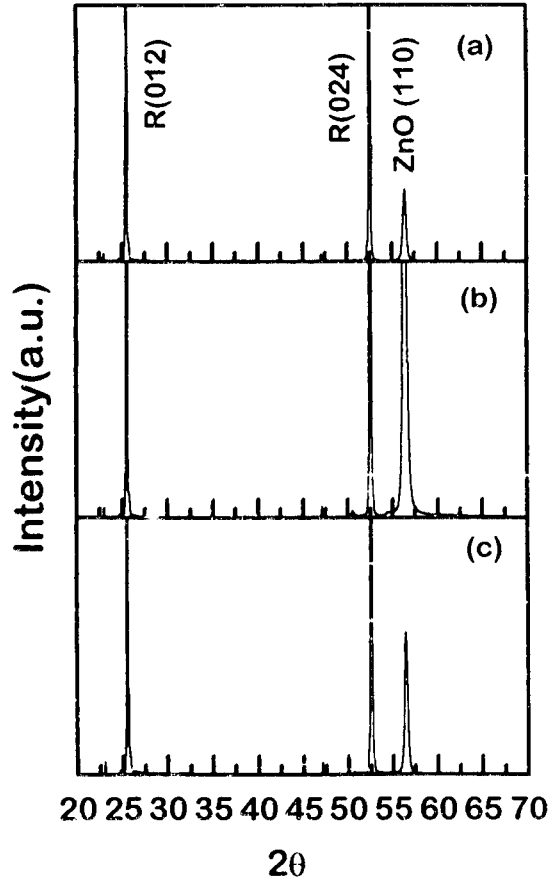


Fig. 4. Variation of XRD patterns of ZnO thin films deposited under a conditions of substrate temperature 400°C, Ar/O₂=50/50 with applied rf power: (a) 200W, (b) 250W and (c) 300W.

서 rf 전력의 변화에 따른 결정 구조 변화를 관찰하였다. Fig. 4는 5mTorr, 400°C의 조건에서 rf 전력을 변화시킨 결과이다. 250W에서 가장 결정성이 좋은 박막을 얻을 수 있었으며, 오히려 300W에서는 결정성이 퇴화되고 있었다. 이는 고전력하에서는 높은 에너지를 갖는 이온의 충돌에 의하여 박막이 결정성이 퇴화되었거나, 높은 증착속도 인해서 에피성장을 위한 원자 배열에 필요한 시간을 갖기 못했기 때문이다. Fig. 5의 rf 전력에 따른 X-ray rocking curve에서도 역시 300W에서는 결정성이 퇴화되는 동일한 결과를 보여 주고 있다. Fig. 6의 rf 전력에 따른 증착 속도를 보면, 300W에서는 전술한 바와 같이 너무 높은 증착 속도로 인하여 원자가 표면에서 에피 성장을 위한 재정열 시간을 충분히 공급하지

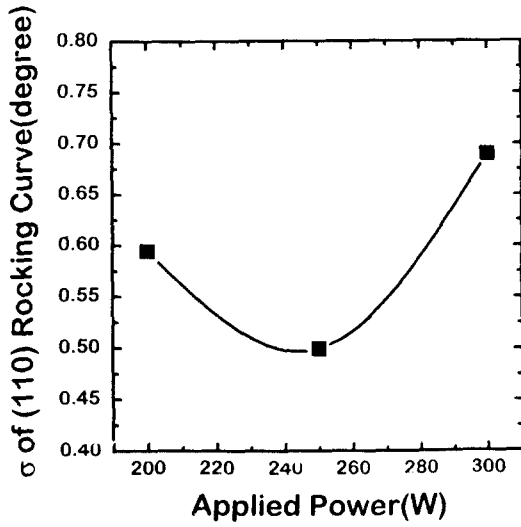


Fig. 5. Variation of standard deviations of ZnO thin films with applied rf power.

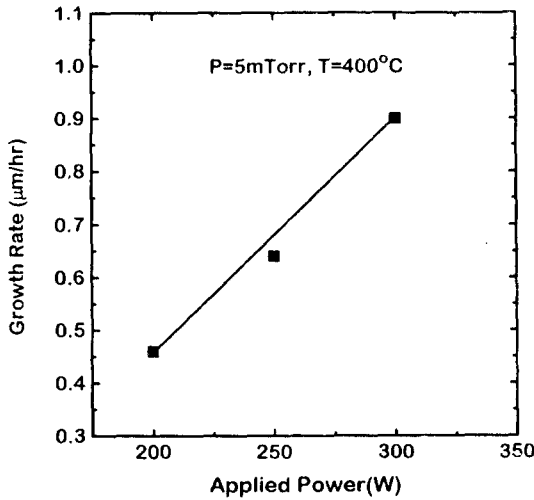


Fig. 6. Variation of growth rate with applied rf power.

못하기 때문에 250W에서보다 결정성이 떨어지는 요인을 제공하고 있다.

이상의 결과로부터 본 실험에서 SAW 특성 분석을 위한 ZnO 박막의 최적 증착조건은 5mTorr, 250W, 400°C 임을 알 수 있으며, 이 조건에서 증착된 ZnO 박막이 단결정 에피 성장을 했는지 확인하기 위하여 Fig. 7과 같이 RHEED로 분석한 결과 (110)면으로 단결정 박막으로 성장되었음을 확인할 수 있었다.

상기의 조건에서 증착된 ZnO 박막을 이용하여 SAW 특성을 분석하였다. Fig. 8은

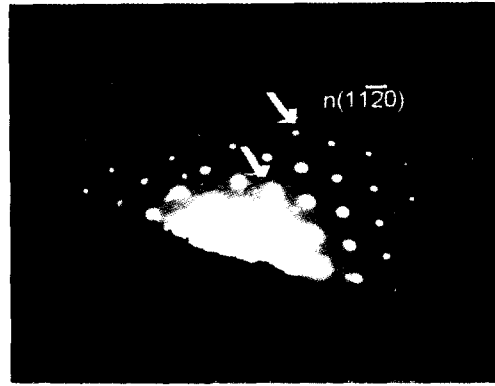


Fig. 7. RHEED diffraction pattern of epitaxial (110) ZnO thin film.

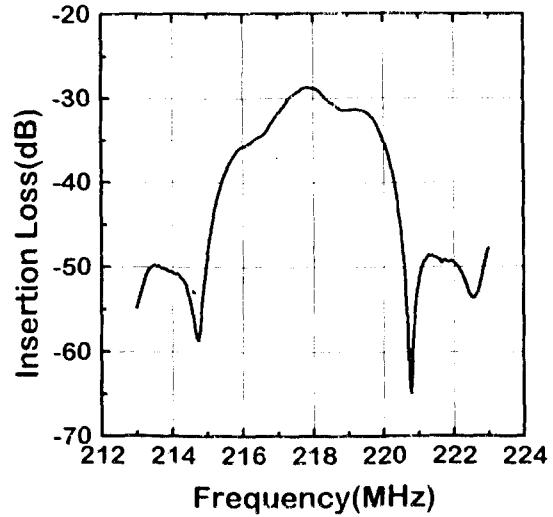


Fig. 8. Frequency response of ZnO structure SAW.

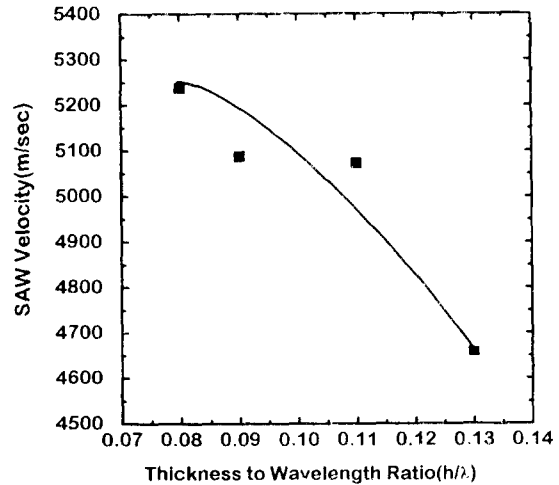


Fig. 9. Variation of SAW velocity with h/λ .

SAW 주파수 특성으로서 중심주파수는 218.2MHz, 삽입손실은 약 28dB, velocity는 5232m/s, 밴드 폭은 6dB 정도를 보여주고 있다. 여기서 삽입손실이 큰 값을 갖는 것은 측정시 여러 가지 에러 요인에 의한 것으로서 측정 기술을 보완하면 그 값은 많이 개선되어 질 수 있다. 전단속도의 경우를 보면 기존에 발표된 값에¹²⁾ 비하여 최소한 뒤지지 않는 좋은 결과를 보여주고 있으며, 이 박막을 고주파 영역에 적용하는데 적합한 특성을 갖고 있다고 판단된다.

Fig. 9는 h/λ (h : 박막의 두께, λ : 파장)에 따른 SAW 속도로서 이 값의 증가에 따라서 줄어 들고 있다. 이는 두께가 얇아짐에 따라서 SAW 속도가 큰 사파이어 기판(약 6000m/s)의 영향을 받지만, 두께가 어느 이상 두꺼워지면 SAW가 ZnO박막에만 걸리기 때문에 ZnO 박막 자체의 속도(약 2500-2600m/s) 이상 값을 가질 수 없기 때문이다.

4. 결 론

R-sapphire 기판위에 rf magnetron 스퍼터 방법으로 ZnO 박막을 증착한 결과, 증착온도, 압력, rf 전력에 의해 박막 성장면의 전이가 관찰되었으며 5mTorr, 400°C, 250W의 rf power에서 가장 우수한 (110) 방향의 에피 ZnO 박막이 성장 되었다. 이 박막의 X-ray rocking curve의 σ 값은 최소 0.5도의 우수한 특성을 보이고 있었다. ZnO 압전 박막의 SAW 특성을 분석하기 위하여 제작된 마스크를 사용하여 IDT를 구성한 후 SAW 특성을 분석한 결과 $h/\lambda=0.08$ 의 조건에서 전단속도가 약 5232 m/s로서 고주파용 SAW 필터의 제조에 적합한 특성을 보이고 있다.

감사의 글

본 연구는 서울대학교 반도체공동연구소의 교육부 반도체분야 학술연구조성비(과제번호: ISRC 95-E-5008)에 의해 수행하였습니다.

참 고 문 헌

1. 湯原章綱, 電通學會資料, CPM 88-27, 39 (1998)
2. J. Koike, K. Shimoe and H. Ieki, Jpn. J. Appl. Phys. vol. 32, p2337 (1993)
3. T. Mitsuyu, O. Yamazaki, K. Ohji, K. Wasa, Ferroelectrics, Vol. 42, 233 (1982)
4. G. A. Rozgonyi, W. J. Polito, J. Vac. Sci. Technol., Vol. 6, No. 1, 115 (1968)
5. M. S. Wu, T. Shiosaki, A. Kawabata, IEEE J. Quantum Elec., QE-23, 7, 1105 (1987)
6. M. S. Wu, A. Azuma, T. Shiosaki, A. Kawabata, J. Appl. Phys., 62(6), 15, 2482 (1987)
7. C. K. Lau, S. K. Tiku, K. M. Lakin, J. Electrochem. Soc. Vol. 127, No. 8, 1843 (1980)
8. S. K. Kiku, C. K. Lau, K. M. Lakin, Appl. phys. Lett., 36(4), 15, Feb., 318(1980)
9. J. G. Noltes, "Zinc Chemicals", 212-214, Zinc Institute Inc., New York, (1973)
10. M. E. Volpin, I. S. Kolomnikov, "Organometallic reactions", Vol. 53, Wiley-Interscience, New York (1975)
11. J. B. Butt, "Reactor kinetics and Reactor Design", Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ (1980)
12. M. Lewis, Proc. IEEE Ultrasonics Symp., p12 (1982)
13. Y. J. Kim and H. J. Kim, Material Letters, 21, p351 (1994)