

## 마그네트론 스퍼터링법으로 증착한 투명전극용 Al도핑된 ZnO의 공정 분위기에 따른 구조적, 전기적, 광학적 특성비교

임근빈 · 이종무<sup>†</sup>  
인하대학교 신소재공학부

### Dependence of the Structural, Electrical, and Optical Properties of Al-doped ZnO Films for Transparent Conductors on the Process Atmosphere in Magnetron Sputtering

Keunbin Yim and Chongmu Lee<sup>†</sup>

Department of Materials Science and Engineering, Inha University, 253 Yonghyeon-dong,  
Incheon 402-751, South Korea

(2005년 7월 11일 받음, 2005년 8월 2일 최종수정본 받음)

**Abstract** Effects of the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio in the sputtering process on the crystallinity, surface roughness, carrier concentration, carrier mobility, and optical properties of Al-doped ZnO thin films deposited on sapphire (001) substrates by RF magnetron sputtering were investigated. XRD spectra showed a preferred orientation along the c-axis and a minimum FWHM of the (002) XRD intensity peak for the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio of 0.5. The (101) peak also appeared and the degree of preferred orientation decreased as the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio increased from 0.5 to 1.0. AFM analysis results showed that the surface roughness was lowest at the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio of 0.5 and tended to increase owing to the increase of the grain size as the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio increased further. According to the Hall measurement results the carrier concentration and carrier mobility of the film decreased and thus the resistivity increased as the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio increased. The transmittance of the ZnO:Al film deposited on the glass substrate was characteristic of a standing wave. The transmittance increased as the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio in RF magnetron sputtering increased up to 0.5. Considering the effects of the the O<sub>2</sub>/Ar flow ratio on the surface roughness, electrical resistivity and transmittance properties of the ZnO:Al film the optimum O<sub>2</sub>/Ar flow ratio was 0.5 in the RF magnetron sputter deposition of the ZnO:Al film.

**Key words** ZnO:Al, RF-magnetron sputtering, Al doping, O<sub>2</sub>/Ar gas flow ratio, transparent conductor.

### 1. 서 론

ITO (indium tin oxide)는 가시광선 영역에서의 높은 광투과율(~90% at 550 nm), 낮은 전기적 비저항(~2×10<sup>-4</sup> Ωcm), 높은 일함수 때문에 LCD(liquid crystal display), 유기EL(OLED)과 태양전지 부분의 투명전극으로 널리 사용된다.<sup>1)</sup> 그럼에도 불구하고 ITO의 원소인 인듐과 주석의 생산단가가 고가이므로 ITO로 제작된 투명전극재료 또한 고가이다. 그러므로, 저렴한 ZnO (zinc oxide)는 ITO의 대체재료로 매우 각광받고 있다. ZnO는 ITO에 비해 쉽게 습식 에칭이 가능하며, 독성이 없고 플라즈마 노출에 강한 저항력이 지니고 있으며, 낮은 온도에서 성장시킬 수 있는 장점을 가지고 있다. 이러한 특성 때문에 ZnO는 ITO에 비해 플라즈마에 노출되어 있는 투명전극

기판과 같은 태양전지를 제조하는데 특히 유리하다.<sup>2,3)</sup>

Un-doped ZnO는 n형 반도체이지만, Al-doped ZnO (AZO)는 더 낮은 비저항(~2×10<sup>-4</sup> Ωcm) 나타내므로 투명전극용으로 적합하다.<sup>4,5)</sup> 그러나 알루미늄 도핑만으로 ZnO의 투과도는 개선되지 않기 때문에 높은 투과도를 요구하는 평판디스플레이 패널의 투명전극으로 사용하기에는 아직 미흡하다. 지금까지 투명전극용 ZnO:Al 막에 관한 보고는 다수 있었으나 아직 ZnO 막의 분위기에 따른 Al이 도핑된 ZnO막의 광학적, 전기적성질에 관하여 자세히 보고된 경우는 별로없다. 본 연구에서는 ZnO:Al 막을 RF마그네트론 스퍼터링법으로 증착함에 있어 O<sub>2</sub>/Ar 가스 유량비가 ZnO:Al 막의 우선배향성, 표면저항 및 전기적 광학적 특성에 끼치는 효과를 조사하였다.

### 2. 실험 방법

ZnO:Al 박막을 사파이어(001) 기판 위에 3인치 AlZnO

<sup>†</sup>E-Mail : cmlee@inha.ac.kr

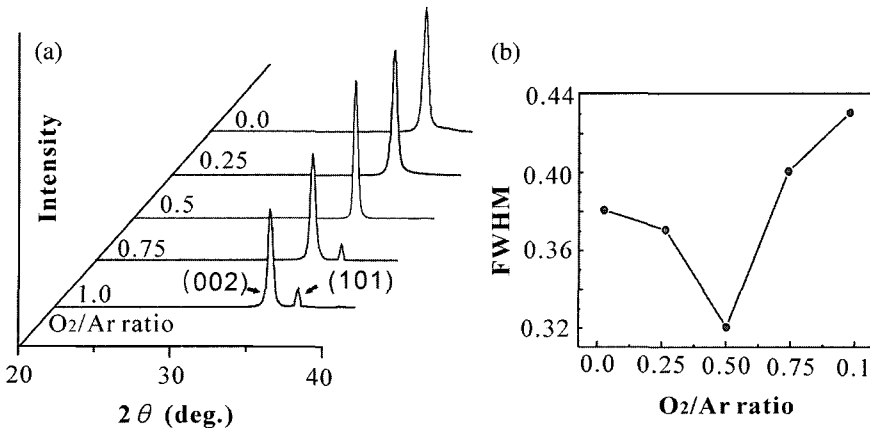
**Table 1.** The standard magnetron sputtering process parameters for ZnO thin film deposition

Target	3 in AlZnO (Zn: 97 wt%, Al: 3 wt%)
Basic pressure	10 <sup>-6</sup> torr
Process pressure	0.05 torr
Ar gas flow rate	20 sccm
O <sub>2</sub> gas flow rate	0, 5, 10, 15, 20 sccm
Substrate temperature	200°C
RF power	150 W

(ZnO: 97 wt%, Al: 3 wt%)의 타겟을 이용하여 RF 마그네트론 스퍼터링법으로 성장시켰으며, 타겟과 기판 사이의 거리는 8 cm였다. 막 증착전 기판을 아세톤과 메탄올로 각각 10분 동안 세정하고 DI water로 행군 후 질소가스로 건조시켰다. 기저진공 상태는 10<sup>-6</sup> Torr 이었고, 작동 및 반응가스로 사용되는 아르곤과 산소는 MFC(mass flow controller)로 그 흐름을 조절하였다. 이때 Ar가스의 유량은 20 sccm으로 고정하였고, O<sub>2</sub>가스는 0, 5, 10, 15, 20 sccm으로 변화시켰다. 또한, 공정압력은 0.05 Torr, 기판온도는 200°C로 고정하였다. 이때 RF 파워는 150 W를 유지하였다. 자세한 실험조건은 Table 1에 나타났다. 결정성을 분석하기 위해 Cu K $\alpha$  선을 사용하는 X-ray 회절(XRD; Rigaku 2500PC)장비를 이용하여 관찰하였다. 또한 atomic force microscopy (AFM: Topometrix-AccurexII)를 이용하여 ZnO:Al film의 morphology를 관찰하였으며, 증착된 ZnO:Al막의 두께는  $\alpha$ -step (dektak-3)를 사용하여 측정하였다. Hall 측정장비(HEM-2000)와 UV/VIS spectroscope를 사용하여 전기적 특성 및 광학적 특성을 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

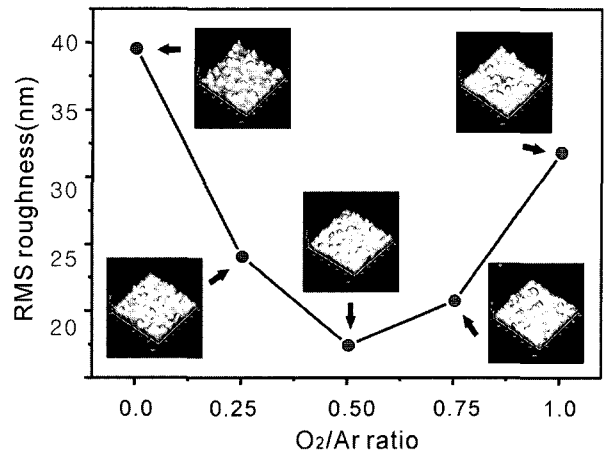
Fig. 1(a)는 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비의 변화에 따른 ZnO:Al



**Fig. 1.** (a) XRD patterns and (b) FWHM of the (002) peak of ZnO:Al thin films for different O<sub>2</sub>/Ar gas flow ratios in RF magnetron sputtering.

박막의 XRD 스펙트럼의 변화를 나타낸 그림이다. 일반적으로 스퍼터링된 ZnO:Al 박막은 다결정이며 각 결정들은 기판에 수직인 c-축 방향으로 성장한다. 산소의 유량비가 증가함에 따라 (002)피크 강도는 증가하다가, O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 0.5일 때 최대가 되었고, O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 0.5 이상으로 증가할 경우 결정성이 오히려 떨어지고 (101)피크가 관찰되었다. Fig. 1(b)는 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비의 변화에 따른 (002)피크의 반가폭의 변화를 나타낸 그림인데, 유량비가 0.5일 때 반가폭이 가장 낮았다. 이와 같은 결과는 ZnO:Al 박막 제조에서 일정량의 산소 유입이 있어야 결정립 배향성이 좋아져 우수한 결정성을 얻을 수 있지만 산소공급량이 초과하면 오히려 결정성은 저하됨을 말해 주는 것이다.

Fig. 2는 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량을 변화시키며 성장시킨 ZnO:Al 박막의 AFM측정결과이다. O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 0인 경우 거칠기가 가장 나빴으며, O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 0.5인 경우에 가장 표면 거칠기가 가장 우수했다. 그러나 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 0.75와 1 경우에는 다시 표면 거칠



**Fig. 2.** The RMS roughness of the ZnO:Al thin film surfaces as a function of the O<sub>2</sub>/Ar gas flow ratio.

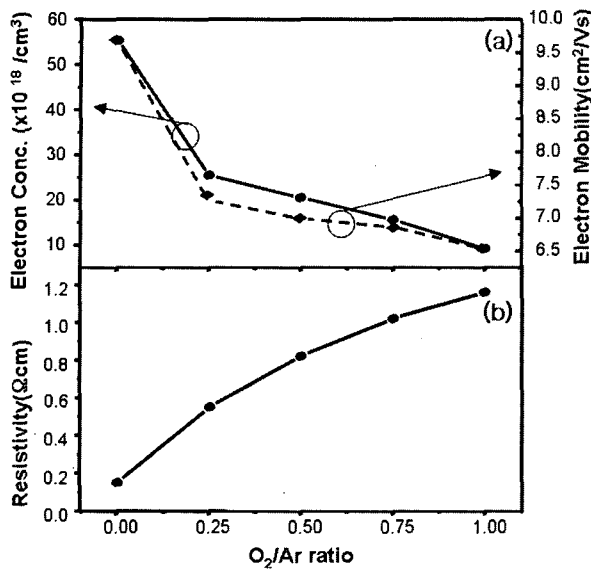


Fig. 3. The electron concentrations, electron mobility, and electrical resistivity of the ZnO:Al thin film as functions of the O<sub>2</sub>/Ar gas flow ratio.

기가 나빠짐을 볼 수 있다. 이러한 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비에 대한 표면 거칠기의 변화는 결정성의 변화와도 잘 일치한다. 이것은 O<sub>2</sub>의 유입이 일어나면 증착된 박막의 결정립이 크기가 감소하면서 매끄럽고 전체적으로 매우 고른 표면상태를 보이지만 산소유입이 그 이상으로 증가하면 결정립들이 다시 성장하는 것처럼 보이는데, 이러한 표면형상의 변화는 박막 표면에서 재스퍼터링이 발생함을 암시하는 것이다. 요컨대, ZnO 박막 증착에 있어서 스퍼터링시 일정량의 산소 유입이 있어야 결정성과 표면형상이 우수한 막을 성장시킬 수 있다.

Fig. 3은 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비에 따른 ZnO:Al 박막의 전자 농도, 전자 이동도, 전기적 비저항을 나타낸 그래프로서, 이것으로부터 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 증가할수록 전자 농도와 전자 이동도는 줄어들음을 확인할 수 있다. 비저항은 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 증가함에 따라 포물선적으로 변하는 경향을 보인다. 이것은 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 증가함에 따라 산소량이 증가함으로 산소가 acceptor로 작용하여 보상효과를 유발하기 때문으로 판단된다. 또한 캐리어 이동도는 감소하는데 이것은 산소량이 증가함에 따라 impurity scattering이 더 활발해지기 때문이다.

Fig. 4는 유리기판 위에 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비에 따른 ZnO:Al 박막을 성장시켜 투과도를 측정된 그래프이다. 투과도 스펙트럼은 standing wave특성을 보였다. Standing

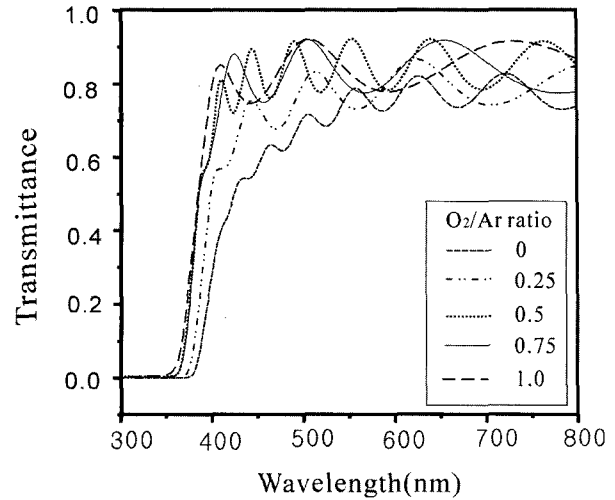


Fig. 4. The transmittance spectra of ZnO:Al thin films deposited by RF magnetron sputtering with different O<sub>2</sub>/Ar gas flow ratio.

wave의 발생이 나타나는 이유는 ZnO:Al 박막과 유리기판 사이의 경계에서 입사광과 반사광 사이의 간섭으로 인한 것이며, 투과도는 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비가 최고 0.5까지는 증가했지만, 그 이상의 O<sub>2</sub>/Ar가스 유량비에서 투과도는 증가하지 않았다.

#### 4. 결 론

Al 도핑된 ZnO막의 구조적, 전기적 및 광학적 성질은 O<sub>2</sub>/Ar 가스 유량비의 효과에 따라 달라지는 것으로 조사되었다. 그 결과로 O<sub>2</sub>/Ar가스유량비가 0.5에서 전기적 특성만 조금 나쁠뿐, 결정성, 표면 거칠기 및 투과도의 특성은 모두 가장 우수한 것으로 나타났다.

#### 참 고 문 헌

1. H. L. Hartnagel, A. L. Dawar, A. K. Jain and C. Jagadish, *Semiconducting Transparent Thin Films*, Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, PA (1995).
2. S. Mayer and K. L. Chopra, *Sol. Ener. Mat.* **17**, 319 (1998).
3. H. A. Wanka, E. Lotter and M. B. Shubert, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **336**, 657 (1994).
4. H. Kim, A. pique, J. S. Horwitz, H. Murata, Z. H. Kafafi and D. B. Chrisey, *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 3444 (1999).
5. J. Hu and R. G. Gordon, *J. Appl. Phys.*, **71**, 880 (1992).