≪연구논문≫ 한국진공학회지 제20권 2호, 2011년 3월, pp.141~145

RF Magnetron Sputtering법으로 제작한 ZnO:Al 박막의 초기 압력에 따른 특성

김덕규[a]* · 김홍배[b]

[a]충북대학교 전자공학부, 청주 361-763

[b]청주대학교 전자정보공학부, 청주 360-764

(2010년 11월 16일 받음, 2011년 1월 17일 수정, 2011년 3월 3일 확정)

ZnO:Al 박막을 RF magnetron sputtering 법을 이용하여 초기 압력에 따라 증착하고 박막의 구조적, 광학적, 전기적 특성을 연구하였다. 초기 압력 변화에 의해 ZnO:Al 박막의 특성의 변화를 확인하였고 고품질의 박막을 얻을 수 있었다. 모든 ZnO:Al 박막에서 (002)면의 우선 배향성을 보였으며 가시광선 영역(400~800 nm)에서 85% 이상의 좋은 투과도를 보였다. 초기 압력이 낮아질수록 결정성, 비저항 그리고 성능지수 특성이 향상됨을 확인하였다. 초기 압력에 따른 비저항의 향상은 결정립 크기 변화에 의한 것으로 판단된다.

주제어 : ZnO:Al, 투명전도막, RF magnetron sputtering, 초기 압력, 유리기판

I. 서 론

최근, 광전 소자와 태양 전지의 기술 발전과 더불어 투명전도 산화막(transparent conductive oxide, TCO)에 대한 많은 연구가 진행되고 있다 [1,2]. ZnO 박막은 Al-, Ga-, B- 등의 3족 원소를 도핑함으로써 낮은 저항성과 가시광선 영역에서의 높은 투과율을 갖는다 [3-6]. 특히, Al이 도핑된 ZnO (AZO) 박막은 현재 TCO 물질로서 가장 많이 사용되고 있는 ITO (indium tin oxide)의 유력한 대체 물질로서 많은 연구가 진행되고 있다. 이러한 이유는 AZO가 우수한 전기적, 광학적 특성 뿐만아니라 풍부한 매장량으로 인한 낮은 원가, 낮은 제조 비용과 제조의 용이성과 같은 많은 장점을 갖고 있기 때문이다 [7,8]. 또한, AZO 박막은 광전소자의 응용을 위하여 RF magnetron sputtering법을 이용하여 높은 증착율의 대면적화가 가능하다 [9]. 이러한 이유로 AZO 박막은 RF magnetron sputtering 장비의 공정인자인 공정압력 [10], 증착 온도 [11], RF 파워 [12], Ar 유량 [13] 등 다양한 공정인자 변화에 따라 증착되고 그 특성들이 연구되어 왔다. 많은 연구에도 불구하고, RF magnetron sputtering 장비의 초기 압력 변화에 따른 AZO 박막의 특성에 대한 연구는 미미한 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 RF magnetron sputtering 장비를 이용하여 초기 압력 변화에 따라 AZO 박막을 증착하였으며 AZO 박막의 구조적, 광학적 그리고 전기적 특성을 분석하고 상호연관성을 살펴보았다.

II. 실험방법

AZO 박막은 Corning #1737 유리 기판 위에 RF magnetron sputtering 장비를 이용하여 증착하였다. 준비된 유리 기판은 아세톤, 메탄올 그리고 DI (deionization) water에서 각 5분간 초음파 세정을 하였다. 세정된 기판은 질소 가스를 이용하여 건조하였고 잔존 수분을 제거하기 위하여 150°C, 1분간 베이킹을 실시하였다. AZO 박막을 증착하기 위해 2 wt%의 Al_2O_3가 도핑된 ZnO 타겟을 스퍼터링 타겟으로 이용하였다. 프로세스 변화인자인 초기 진공도를 8×10^{-7}, 2.0×10^{-6}, 그리고 4.0×10^{-6} Torr로 변화하여 AZO 박막을 증착하였다. 설정한 초기진공도에 도달하면 Ar 가스를 챔버내로 주입하여 공정 압력을 2.0×10^{-2} Torr 로 유지한 후 pre-sputtering 을 10분간 실시하였다. AZO 박막 증착을 위한 RF 파워는 25 W, Ar 유량은 60

* [전자우편] maruchi11@hanmail.net

sccm, 그리고 증착온도는 상온의 조건에서 시행되었다. 또한, 증착된 모든 박막의 두께는 약 200 nm로 고정하였다. AZO 박막증착을 위한 공정 조건이 Table 1에 나타나있다.

증착된 AZO 박막은 X-선 회절분석기(XRD)를 통하여 결정 구조와 결정성을 확인하였다. 투과도 특성은 자외선-가시광선-근적외선(UV-Vis-NIR)의 분광분석기를 이용하여 파장 200~1,000 nm의 범위에서의 측정하였다. AZO 전도막의 전기적인 특성은 Hall 측정을 통하여 측정하였다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 초기 압력 변화에 따른 AZO 박막의 XRD 결과를 보여주고 있다. 초기 압력에 상관없이 증착된 모든 AZO 박막은 2Θ가 34.4°와 62.8°인 부근에서 피크를 보였고 각각의 피크는 ZnO (002) 면과 (103) 면의 방향을 나타낸다. 주피크가 34.4°의 (002) 면에서 나타난 것에 의해 AZO 박막은 c-축 방향의 우선 배향 결정성을 가지며 성장하고 있음을 확인하였다 [14]. 또한, 초기 압력이 8×10^{-7} Torr인 샘플에서 47.5°의 (102) 면이 추가로 발견되었으며 다결정 특성이 심화됨을 확인하였다. (002) 면의 XRD 주피크 강도는 초기 압력이 낮을수록 증가하였다. 즉, 8×10^{-7} Torr에서 가장 강하였으며, 2.0×10^{-6}, 그리고 4.0×10^{-6} Torr에서는 8×10^{-7} Torr에 비해 1/3배로 감소하였고 두 Ar 유량에서 비슷한 피크 강도를 나타내었다. (002)과 (103) 면의 피크강도비는 낮은 초기 압력일수록 증가함을 보이고 있다. 초기압력 변화에 따른 결정성을 확인하기 위해 반치폭(FWHM)을 관찰하였다. 초기 압력이 낮을수록 반치폭은 0.55°에서 0.37°로 감소하였는데 이는 초기 압력이 낮을수록 결정성이 향상됨을 나타낸다. 이 결과를 통해 볼 때 AZO 박막의 구조적 특성이 초기 압력에 많은 영향을 받고 있음을 확인하였다.

Table 1. Deposition conditions of AZO thin films with various base pressure.

Target	Al-doped ZnO (2wt%)
Substrate	Glass (Corning #1737)
RF Power [w]	25 W
Ar flow [sccm]	60
Base pressure [Torr]	8.0×10^{-7}, 2.0×10^{-6}, 4.0×10^{-6}
Working pressure [Torr]	2.0×10^{-2}
Deposition temperature	Room temperature
Film thickness [nm]	200

XRD 결과를 이용하여 결정립의 크기를 알아보기 위해 다음의 Scherrer 공식을 이용하여 계산해 보았다 [15].

$$D=\frac{0.9\lambda}{B\cos\theta}$$

여기에서, λ는 X-선의 파장, Θ는 회절각 그리고 B는 FWHM을 나타낸다. 계산된 결정립의 크기는 초기 압력이 낮아질수록 15.1 nm에서 22.29 nm로 증가함을 보이고 있다. 초기 압력에 따른 FWHM과 결정립 크기의 변화가 Fig. 2에 나타나있다.

Fig. 3은 UV-Vis-NIR 분광분석기를 이용하여 200~

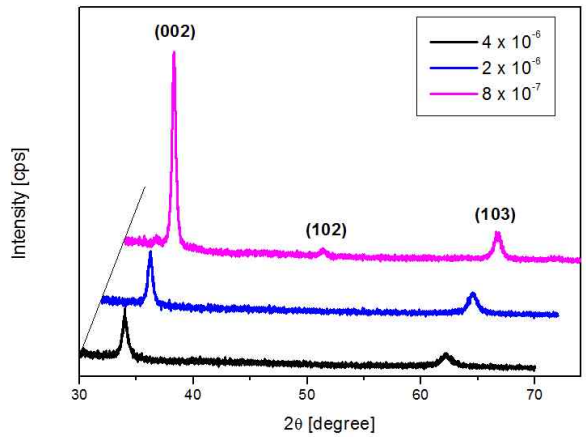

Figure 1. XRD traces of AZO films with various base pressure.

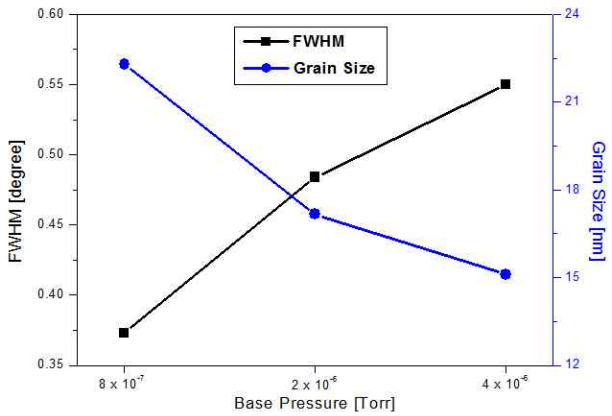

Figure 2. FWHM and grain size of AZO thin films with various base pressure.

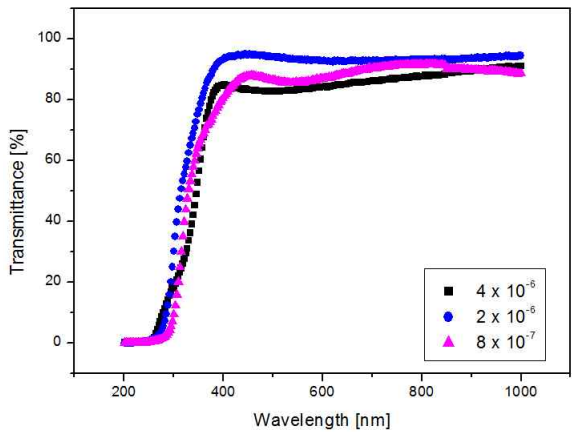

Figure 3. Transmittance spectra of AZO films with various base pressure.

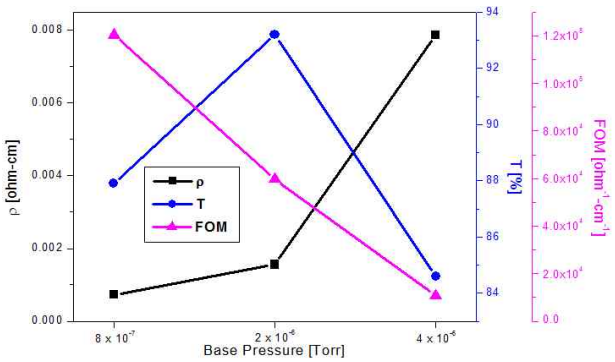

Figure 4. Resistivity, average transmittance and FOM of AZO thin films with various base pressure.

1,000 nm의 파장대에서 측정한 AZO 박막의 투과도에 대한 특성을 나타내고 있다. 가시광선(400 nm～800 nm) 영역에서 AZO 박막의 평균 투과도는 85%～93%의 양호한 특성을 보였으며 2×10^{-6} Torr에서 93%의 가장 높은 투과도를 보였다. AZO 박막에 대한 평균 투과도가 Fig. 4에 나타나있다. 또한, 초기 압력에 따라 차이는 있지만 380 nm 부근에서 급격한 흡수 곡선을 보이고 있다. 380 nm 부근에서 흡수 곡선은 AZO 박막의 광학적인 밴드갭에 의한 것으로 2×10^{-6} Torr에서 가장 큰 광학적 밴드갭을 가짐을 확인하였다. 광학적 특성은 초기 압력에 따라 일정한 경향성이 보이지 않았다.

Table 2는 초기 압력에 따라 증착된 AZO 박막의 전기적 특성을 나타내었다. Hall 측정 결과 초기 압력이 감소하면서 비저항도 감소함을 보이고 있다. 초기압력 8×10^{-7} Torr에서 9.7×10^{20} cm^{-3}의 캐리어 농도, 8.8 $cm^2/V\cdot s$의 이동도 그리고 7.3×10^{-4} Ω・cm의 비저항으로 가장 우수한 전기적 특성을 나타내었다. 초기 압력에 따른 전기적 특성의 변화는 XRD 결과와 일치함을 보여 주고 있는데 특히 결정립 크기에 의해 전기적 특성이 영향을 받은 것으로 판단된다. Igasaki는 결정립 크기가 감소하면 결정립계(grain boundary)가 증가하게 되고 이로 인해 표면적이 증가하게 되면서 산소의 흡착이 증가하여 비저항이 증가한다고 보고하였다 [16]. 따라서, AZO 박막의 전기적 특성이 초기 압력에 상당히 영향을 받음을 알 수 있었다.

Table 2. Electrical properties of AZO thin films with various base pressure.

Base pressure [Torr]	Carrier concentration[cm^{-3}]	Mobility [$cm^2/V\cdot s$]	Resistivity [Ω·cm]
8.0×10^{-7}	9.7×10^{20}	8.8	7.3×10^{-4}
2.0×10^{-6}	4.4×10^{20}	9.1	1.6×10^{-3}
4.0×10^{-6}	2.1×10^{20}	3.8	7.9×10^{-3}

초기 압력에 따라 증착한 AZO 박막의 TCO로서의 성능을 확인하기 위해 전기적 특성과 광학적 특성의 비로 나타나는 성능지수(figure of merit, FOM)를 분석 하였다. 그림 4는 초기압력에 따른 AZO 박막의 성능지수를 나타내었다. 성능지수는 다음의 공식을 이용하여 계산하였다 [17].

$$\Phi = \frac{T}{\rho}$$

여기에서, T는 가시광선 영역에서의 평균 투과도, ρ는 비저항을 나타낸다. 초기 압력 감소에 따라 AZO 박막의 성능 지수는 선형적으로 증가함을 보이고 있는 이는 AZO 박막의 성능이 향상됨을 나타낸다. 초기압력 8×10^{-7} Torr에서 1.2×10^{-5} $\Omega^{-1}\cdot cm^{-1}$의 높은 성능 지수를 보였다. 평균 투과도는 2×10^{-6} Torr의 샘플이 좋았으나 비저항의 영향으로 8×10^{-7} Torr의 샘플에서 가장 좋은 특성이 나타난 것으로 판단된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 AZO 박막의 초기 압력의 변화에 따른 다양한 특성에 대하여 분석하였다. AZO 박막의 결정성과 비저항은 초기 압력이 낮을수록 향상되었다. 투과도는 모든 박막에서 85% 이상의 투과도를 보였다. 또한, AZO 박막의 전기적 특성은 초기 압력이 낮아지면서 결정립 크기가 증

가하게 되고 이로 인해 향상됨을 확인하였다. 본 연구를 통하여 AZO 박막 증착 시 낮은 초기 압력이 구조적 그리고 전기적인 특성을 향상시킬 수 있음을 확인하였다.

참고문헌

[1] K. Tonooka, H. Bando, and Y. Aiura, Thin Solid Films **445**, 327 (2003).

[2] G. K. R. Senadeera, K. Nakamura, and T. Kitamura, Appl. Phys. Lett. **83**, 5470 (2003).

[3] S. H. Cho, J. Korean Vacuum Soc. **18**, 377 (2009).

[4] J. S. Lee, G. C. Kim, H. H. Jeon, S. J. Hwangboe, D. H. Kim, C. M. Seong, and M. H. Jeon, J. Korean Vacuum Soc. **17**, 23 (2008).

[5] M. Lorenz, E. M. Kaidashev, H. von Wenckstern, V. Riede, C. Bundesmann, D. Spemann, G. Benndorf, H. Hochmuth, A. Rahm, H. C. Semmelhack, and M. Grundmann, Solid-State Electron. **47**, 2205 (2003).

[6] A. Maldonado, S. T. Guerra, M. M. Lira, and M. L. Olvera, Sol. Energ. Mat. Sol. C. **90**, 742 (2006).

[7] K. Ellmer, J. Phys. D: Appl. Phys. **34**, 3097 (2001).

[8] S. Major, S. Kumar, M. Bhatnagar, and K. L. Chopra, J. Phys. D: Appl. Phys. **33**, R17 (2000).

[9] S. H. Jeong and J. H. Boo, Thin Solid Films **447**, 105 (2004).

[10] R. J. Honga, X. Jianga, G. Heideb, B. Szyszkaa, V. Sittingera, and W. Werner, **249**, 461 (2003).

[11] J. Mass, P. Bhattacharya, and R. S. Katiyar, Mater. Sci. Eng. B **103**, 9 (2003).

[12] H. P. Chang, F. H. Wang, J. Y. Wu, C. Y. Kung, and H. W. Liu, Thin Solid Films **518**, 7445 (2010).

[13] W. Yang, Z. Liu a, D. L. Peng, F. Zhang, H. Huang, Y. Xie, and Z. Wua, Appl. Surf. Sci. **255**, 5669 (2009).

[14] Y. M. Lu, W. S. Hwang, W. Y. Liu, and J. S. Yang, Mater. Chem. Phys. **72**, 269 (2001).

[15] B. D. Cullity, *Elements of X-ray Diffraction*, (Addison-Wesley, 1978), 102.

[16] Y. Igasaki and H. Kanma, Appl. Surf. Sci. **169-170**, 508 (2001).

[17] H. A. Mohamed, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 4234 (2007).

Properties of ZnO:Al Thin Films Deposited by RF Magnetron Sputtering with Various Base Pressure

D. K. Kim[a]* and H. B. Kim[b]

[a]*School of Electronics Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 361-763*
[b]*Division of Electronics and Information Engineering, Cheongju University, Cheongju 360-764*

(Received November 16, 2010, Revised January 17, 2011, Accepted March 3, 2011)

ZnO:Al thin films were deposited by RF magnetron sputtering with various base pressure, and their structural, optical, and electrical properties were studied. The influence of the base pressure on the ZnO:Al thin film was confirmed and a high-quality thin film was obtained by controlling the base pressure. In all Al-doped ZnO thin films, the preferred orientation of (002) plane was observed and light transmittance in visible region (400 nm~800 nm) had above 85%. With decreasing of base pressure, crystallinity, resistivity, and figure of merit were improved. The improvement of resistivity with base pressure was attributed to the change of grain size.

Keywords : ZnO:Al, Transparent conducting oxide, RF magnetron sputtering, Base pressure, Glass substrate

* [E-mail] maruchi11@hanmail.net