

# 스퍼터 증착으로 형성된 AlTiO 선택적 투과막의 표면 균질성에 따른 광학적 특성

정소운<sup>a</sup> · 임정욱<sup>b</sup> · 이승윤<sup>a\*</sup>

<sup>a</sup>한밭대학교 응용소재공학과, 대전 305-719

<sup>b</sup>한국전자통신연구원 융합부품소재연구부, 대전 305-700

(2011년 10월 18일 받음, 2011년 11월 25일 수정, 2011년 11월 25일 확정)

건물일체형 태양전지는 투명 연료감응형 태양전지 기술을 중심으로 연구개발이 진행되고 있다. 신뢰성-수율 개선 및 대면적화의 필요성 때문에 잘 정립된 박막 공정 기술에 기초하는 Si계 박막 태양전지가 건물일체형 태양전지를 구현할 기술로서 새롭게 조명 받고 있다. Si계 박막 태양전지에 선택적 투과막을 적용하면 가시광선은 태양전지를 투과하고 적외선은 광흡수층으로 반사되기 때문에 투명 태양전지의 변환효율이 향상된다. 본 연구에서는 선택적 투과막의 증착 기술로서 생산성 측면에서 유리한 스퍼터 증착을 이용하여 AlTiO 선택적 투과막을 형성하고 증착 조건을 조절하여 투과율을 향상시켰다.

**주제어** : 스퍼터 증착, 반사방지막, 고반사막, 선택적 투과막, 태양전지

## I. 서 론

태양전지 셀에서 빛을 흡수하는 광흡수층의 효율을 높이기 위하여 반사방지막(anti-reflecting coating) [1,2]과 고반사막(highly reflective layer) [3]을 채용한다. 반사방지막은 광흡수층 계면에서 반사되는 빛을 광흡수층으로 투과시키고 고반사막은 광흡수층에서 흡수되지 못하고 빠져나가는 빛을 다시 광흡수층으로 반사시켜 효율을 높이는 역할을 한다. 파장이 다른 빛을 선택적으로 투과시키는 특성을 갖는 선택적 투과막 [4]을 고반사막을 대신하여 사용하면 변환효율은 높고 가시광선을 투과시키는 기능을 갖는 투명 태양전지를 제작할 수 있다. 선택적 투과막은 Fig. 1에서와 같이 태양전지 셀 내의 고반사막 자리에 위치하여 적외선 영역의 파장은 광흡수층으로 반사시키고 가시광선영역의 파장은 투과시킨다. 이제까지 투명 태양전지에 적용되는 선택적 투과막에 대한 연구는 매우 제한적으로 이루어져 왔으며 atomic layer deposition (ALD)을 이용하여 형성한 AlTiO (ATO) 박막의 선택적 투과 특성이 최근에 보고되었다 [5]. ALD의 경우 step coverage 특성이 매우 우수하고 구성 원소의 상대적인 양을 정밀하게 조절할 수 있는 장점이 있지만, 다른 박막 증착법에 비해 증착속도가 작기 때문에 태양

전지 제조에 있어서 단위 공정으로 적용하기는 어렵다. 따라서 본 연구에서는 기존의 증착법인 ALD에 비하여 증착속도가 큰 스퍼터 증착을 이용하여 ATO 선택적 투과막을 형성하였다. 형성된 ATO 박막의 표면 형상을 관찰하고 광

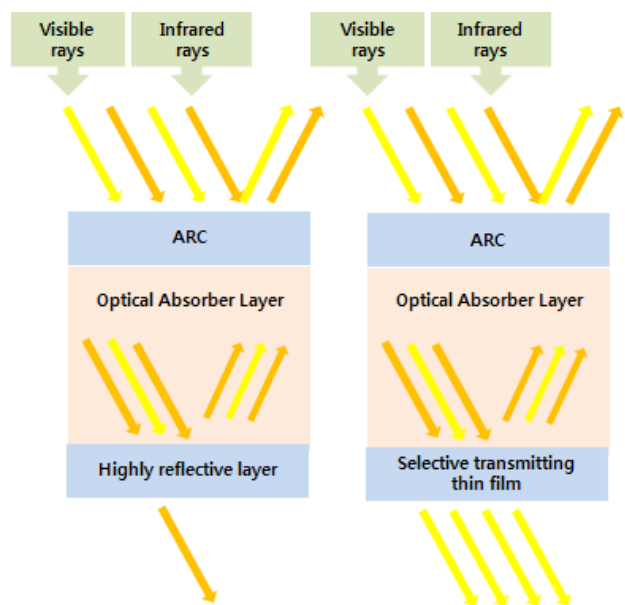


Figure 1. Concept of anti-reflecting coatings (ARCs), highly reflective layers, and selective transmitting thin films.

\* [전자우편] sy\_lee@hanbat.ac.kr

학적 특성을 분석하여 박막 표면의 균질성이 ATO 박막의 투과율에 미치는 효과를 고찰하였다.

## II. 실험방법

스퍼터 증착을 이용하여 선택적 투과막을 형성하기 위해 Al과 Ti 타겟을 장착한 DC/RF 마그네트론 스퍼터링 장치를 이용해 Ar 및 O<sub>2</sub> 혼합기체 분위기에서 반응성 co-sputtering을 실시하였다. Bolo33 투명 유리 기판과 n형 Si 테스트 웨이퍼 기판은 trichloroethylene, 아세톤, 및 에틸알코올 용액에 넣어 초음파세척기로 각각 5분간 세척하였으며 스퍼터링 시 Al과 Ti 타겟의 표면에 존재하는 불순물의 혼입을 최소화하기 위하여 20분 동안 pre-sputtering을 수행하였다. 25~50 W 범위의 RF 전력을 Ti 타겟에 인가하고 11~50 W 범위의 DC 전력을 Al 타겟에 인가하여 플라즈마를 발생시켜 ATO 박막을 형성하였다. Al과 Ti 타겟에 인가되는 각각의 전력이 따른 증착률 변화를 조사하고 이 결과를 통하여 증착 전력과 증착 시간을 조절함으로써 두께와 조성이 서로 다른 ATO 박막을 형성하였다. ATO 박막이 선택적으로 빛을 투과시킬 수 있는 최적의 두께를 탐색하기 위해 박막의 두께가 100 nm 이상일 때 반사율이 가시광선 영역에서 증가하고 적외선 영역에서 감

소하는 결과 [6,7]를 참조하여 100 nm 이하의 두께로 증착을 실시하였다. 반응성 스퍼터링 시 진공조 내의 초기 진공도를  $3.0 \times 10^{-6}$  torr 이하로 배기시킨 후 질량유량계(mass flow controller)로 20 sccm의 Ar을 흘려줌과 동시에 1.5 sccm의 O<sub>2</sub>를 유입시켜 진공조 내의 진공도를  $6.0 \times 10^{-3}$  torr로 유지하였고, 온도는 상온으로 고정하였다. Scanning electron microscope (SEM)를 이용하여 ATO 박막의 표면 형상을 관찰하였고 Auger electron spectroscopy (AES)를 이용해 성분 분석을 실시하였다. 박막의 두께는 Veeco dektak 150을 이용하여 측정하였으며, 박막의 투과율은 UV/vis spectro photometer를 이용하여 300~1,800 nm 범위의 파장 영역에서 측정하였다. Fig.2는 산소 분압에 따른 Al 및 Ti계 박막의 증착률 변화를 나타내는 그래프이다 산소를 주입하지 않고 형성한 Al, Ti 및 AlTi 합금의 증착률에 비하여 산소를 주입시켜 반응성 스퍼터링으로 형성한 산화물 박막의 증착률은 급격히 감소하였으며 산소의 주입량과 증착률은 반비례 관계를 나타내었다. 이러한 증착률의 감소는 스퍼터링 시 주입된 산소 원자에 의하여 타겟 표면에 산화물 층이 형성되어 타겟 표면에서 스퍼터링이 충분히 일어나지 않는 유전체 모드 of 증착률이 되기 때문에 나타난 현상이다 [8].

## III. 실험결과 및 고찰

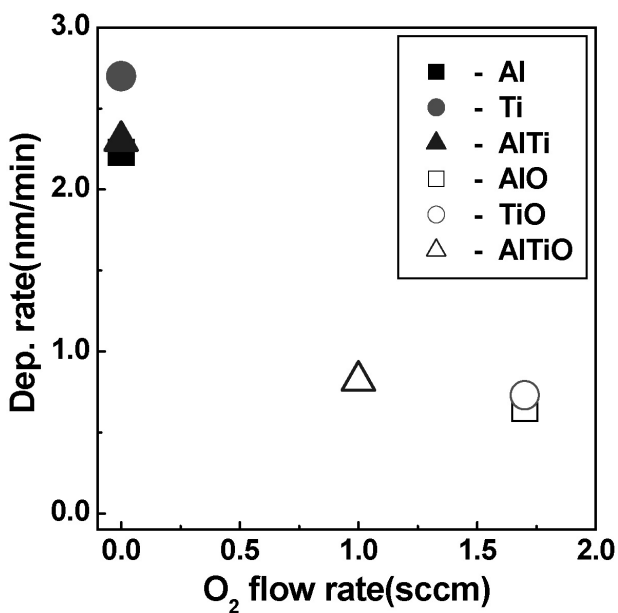


Figure 2. Deposition rate vs oxygen flow rate for various Al- and Ti-based thin films.

Fig. 3은 DC 및 RF 전력이 50 W인 조건에서 co-sputtering을 실시하여 형성한 ATO 박막 표면의 SEM 사진이

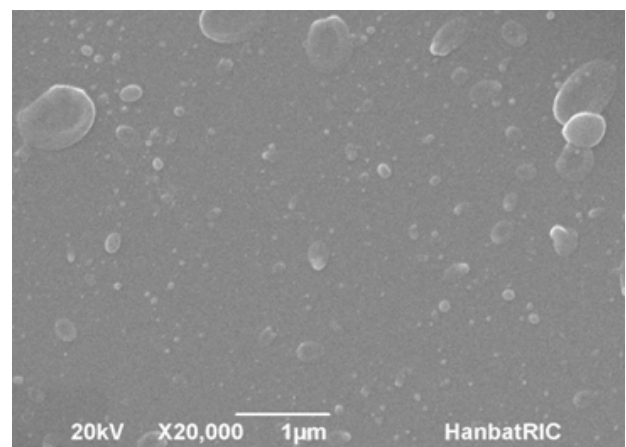


Figure 3. Plain view SEM image of an ATO thin film (Al-50 W, Ti-50 W).

다. ATO 박막의 표면이 균질하지 못한 것을 관찰할 수 있는데, 이러한 현상은 증착 도중 DC 전력이 인가된 Al 타겟에서 아크 방전이 발생하여 ATO 박막 표면에 불균일한 입자가 생성되어 나타난 결과이다. Fig. 4는 AES 깊이 분석을 통해 성분 분석을 실시한 결과로 형성된 ATO 박막에서 다량의 Al 및 O 원소가 검출되었다. 한편 Ti 원소의 경우에는 그 존재를 확인하기 힘들었으며 따라서 앞에서 언급한 아크 방전 발생이 Al 타겟 및 Ti 타겟의 스퍼터링 과정에 심각한 불균형을 초래한다는 결론을 얻을 수 있다. Fig. 5의 AES 표면 스펙트럼에서는 380 eV에 위치한 Ti 피크가 관찰되므로 아크 방전 발생 시 미량의 Ti 원소가 포함된

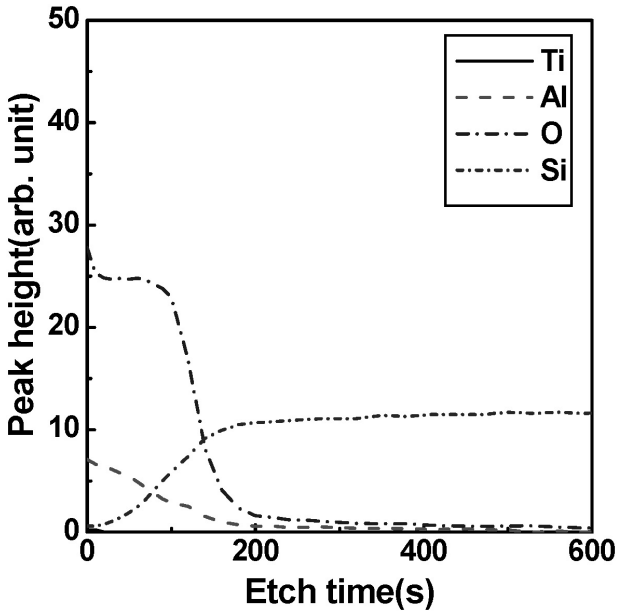


Figure 4. AES depth profile of an ATO thin film (Al-50 W, Ti-50 W).

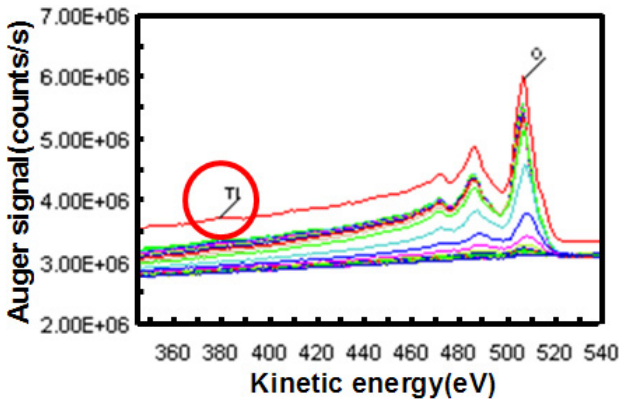


Figure 5. AES surface spectrum of an ATO thin film (Al-50 W, Ti-50 W).

Ti-deficient ATO 박막이 형성된다는 사실을 알 수 있다. Fig. 6는 형성된 ATO 박막의 투과율을 측정된 결과로서 가시광선 영역인 400~800 nm 범위에서 약 85% 이하의 매우 낮은 투과율을 나타내었다. Fig. 3과 같이 ATO 박막 표면이 불균질한 경우에는 ATO 박막에 입사된 가시광선이 여러 방향으로 산란되기 때문에 투과율이 현저히 감소한다. 투과율이 낮으면 투명 태양전지의 구성 요소로서 적용이 불가능하므로 아크 발생을 억제하여 불균일한 입자가 생성되지 않는 증착 조건을 찾아야 한다. 스퍼터 증착 시 발생하는 아크 방전은 진공조 내에서 국부적으로 매우 높은 전력 밀도의 단락 회로가 구성되는 것이며 타겟 또는 진공조 구조물 표면에서 발생하여 심각한 오염 문제와 구조물의 손상을 유발한다 [9]. 특히, Al과 같은 금속 타겟으로 반응성 스퍼터 증착을 실시하여 금속 산화막을 형성하는 경우에 빈번하게 발생한다. 산소를 주입하여 반응성 스퍼터 증착을 하게 되면 금속 타겟 표면에 금속 산화막이 불균일하게 생성되는데 이러한 산화막 주변에서 전계가 왜곡되어 전력 밀도가 증가하고 아크가 발생하게 된다 [10]. 아크 방전과 관련된 인자는 여러 가지가 있는데 증착 파라미터 중에서 직접적으로 영향을 미치는 요인으로는 기체 유량, 기체 압력, 인가 전력, 및 온도가 있다 [9]. 그중에서 전력 밀도 감소에 대한 효과가 크고 생성되는 ATO 박막의 물리적 특성에 미치는 영향이 가장 적은 요인은 인가 전력이다

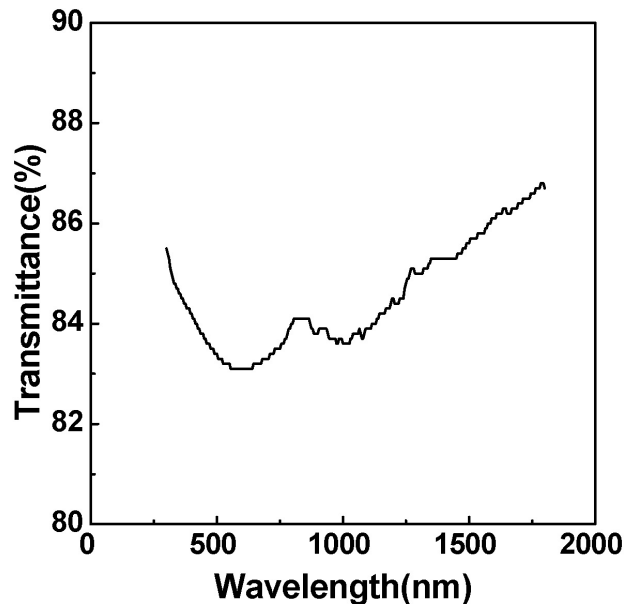


Figure 6. Transmission spectrum of an ATO thin film (Al-50 W, Ti-50 W).

로 Al 타겟에 인가되는 전력을 낮춤으로서 아크 방전이 발생하지 않는 조건으로 DC 전력을 최적화하여 아크 방전을 억제하였다.

Fig. 7은 Al에 인가되는 전력을 25 W 이하로 낮추어 형성한 ATO 박막의 표면 SEM 사진으로 인가 전력이 50W인 경우에 비해서 표면의 거칠기가 뚜렷하게 개선된 것을 확인할 수 있다. Table 1에 ATO 박막의 형성조건 및 그 두께를 정리하였다. Fig. 8의 AES 깊이 분석 결과로부터 Al 타겟에 25 W의 전력을 인가하여 형성한 ATO 박막은 Ti-deficient ATO 박막과 비교하였을 때 상대적으로 많은 양의 Ti 원소를 포함하고 있음을 알 수 있다. 민감도(sensitivi-

ty)를 고려하여 계산한 Al 및 Ti 원소의 원자 비율은 약 1 : 1.7이었다. Fig. 9는 다양한 타겟 인가 전력에 따른 ATO 박막의 투과율 변화를 나타낸 것으로 가시광선 영역인 400 ~ 800 nm 범위에서 투과율이 약 96% 이상의 높은 값을 나타내었다. Fig. 9 및 Table 1에 의하면 두께가 감소함에 따라 투과율이 증가하는 관계를 확인할 수 있다. 그러나 박막의 두께 변화보다는 굴절률과 굴절률의 분산형태가 투과율의 변화에 영향을 미친다는 연구 결과가 알려져 있다 [11]. 그러므로 Fig. 9와 같이 아크가 발생되지 않는 인가 전력 범위 내에서의 투과율 변화는 박막 두께의 영향보다는 Al 타겟 인가 전력에 따라 Al 대 Ti의 원소비가 변화하여 형성

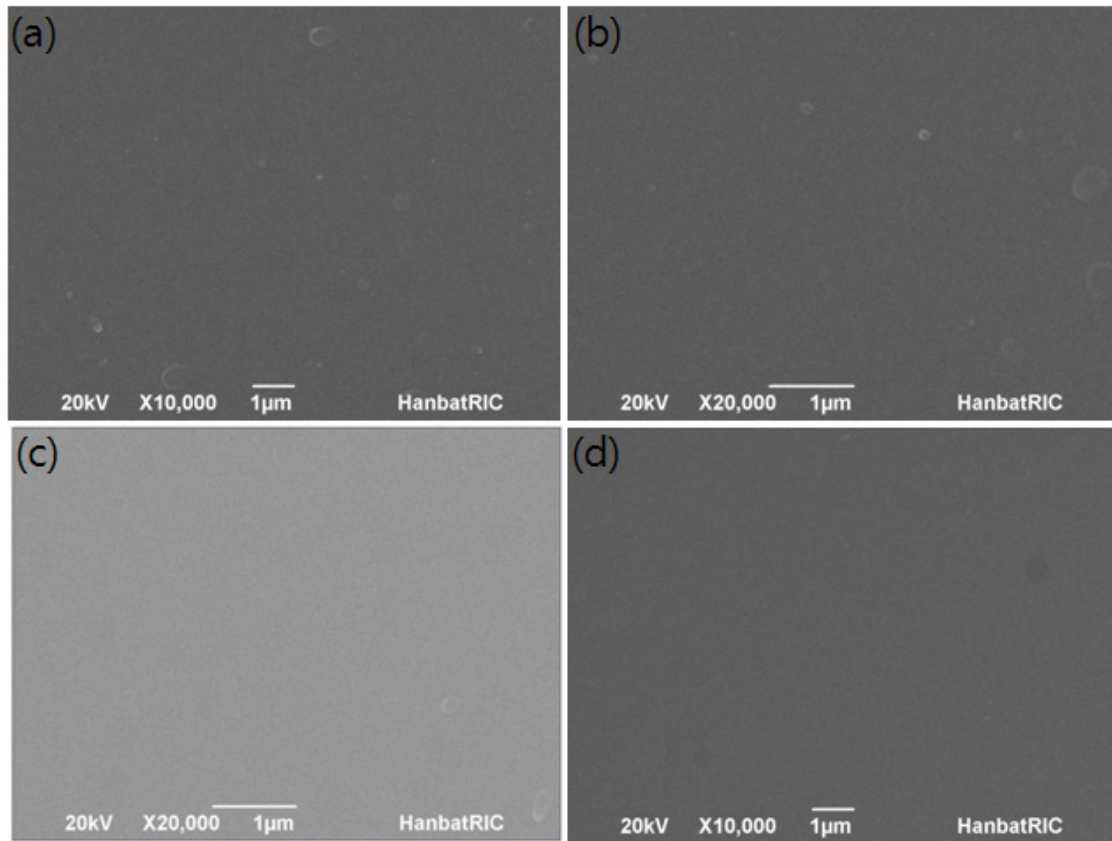


Figure 7. Plain view SEM images of ATO thin films: (a) specimen A (Al-25 W, Ti-50 W), (b) specimen B (Al-20 W, Ti-50 W), (c) specimen C (Al-16 W, Ti-50 W), (d) specimen D (Al-11 W, Ti-25 W).

Table 1. Applied powers and thicknesses of ATO thin films.

	Specimen A	Specimen B	Specimen C	Specimen D
Al power	25 W	20 W	16 W	11 W
Ti power	50 W	50 W	50 W	25 W
Thickness	73 nm	65 nm	51 nm	7 nm

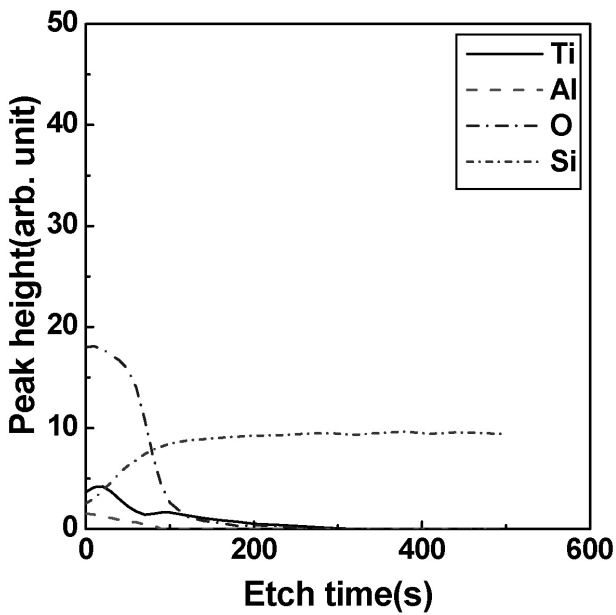


Figure 8. AES surface spectrum of an ATO thin film (Al-25 W, Ti-50 W).

된 ATO 박막들의 굴절률 차이에 의한 것으로 판단된다. 이와 같은 증착 파라미터에 따른 투과율의 가변성 및 높은 투과율은 ATO 박막이 Si 박막 공정 기술에 기반을 둔 투명 태양전지의 기능성 산화막으로 응용될 수 있다는 사실을 나타낸다.

#### IV. 결 론

선택적 투과막으로서의 ATO 박막을 기존의 증착법인 ALD에 비하여 증착속도 측면에서 유리한 반응성 co-sputtering을 이용하여 형성하였다. Al 타겟에 인가되는 전력이 50 W 이상인 조건에서는 타겟 표면에 불균일하게 생성되는 산화막에 의한 아크 방전이 발생하였으며 이에 따라 투과율이 낮고 표면이 거친 ATO 박막이 형성되었다. Al 타겟에 인가되는 전력을 낮추어 아크 방전을 억제함으로써 ATO 박막의 표면이 균질해지고 투과율이 증가하였다. 아크 방전이 발생되지 않는 인가 전력 범위 내에서 Al 과 Ti의 조성비를 조절하여 96% 이상의 투과율을 갖는 ATO 박막을 형성하였으며, 이러한 ATO 박막을 태양전지에 적용함으로써 변환효율이 높은 투명 태양전지의 제조가 가능해지리라 판단된다.

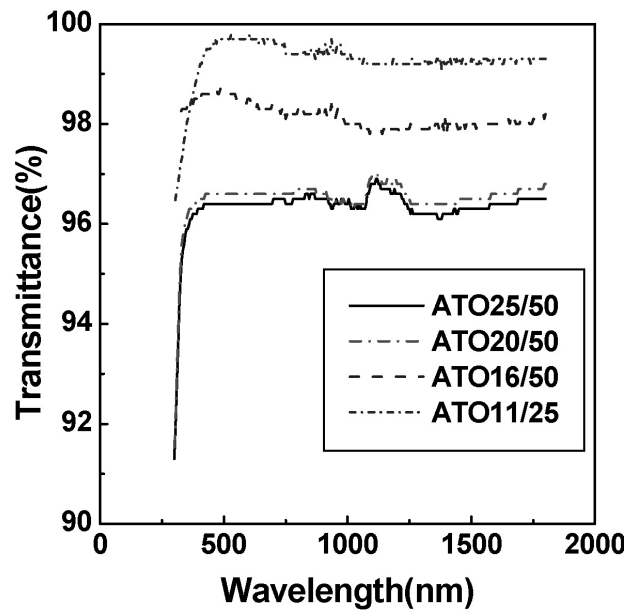


Figure 9. Transmission spectrum of ATO thin films.

#### 감사의 글

This work was supported by New and Renewable Energy Development Program of the Korea Institute of Energy Technology Evaluation and Planning (KETEP) grant funded by the Korea Government Ministry of Knowledge Economy (2010T100100749).

#### 참고문헌

- [1] A. Prasad, S. Balakrishnan, S. K. Jain, and G. C. Jain, *J. Electrochem. Soc.* **29**, 596 (1982).
- [2] D. Chen, *Sol. J. Energy Mater. Sol. Cells.* **68**, 313 (2001).
- [3] W. H. Arnold, III, M. Farnaam, and J. Sliwa. US Patent **4**, 820611 (1989).
- [4] S. U. Jeong, J. W. Lim, and S.-Y. Lee, *Proceedings of the 40th Winter Annual Conference of the Korean Vacuum Soc.* 76 (2011).
- [5] J. W. Lim, S. J. Yun, and S. H. Lee, *J. Korean. Phys. Soc.* **56**, 96 (2010).
- [6] J. W. Lim, S. H. Lee, J. K. Kim, and S. J. Yun,

- Electrochem. Solid-State Lett. **13**, G17 (2010).
- [7] J. W. Lim, S. J. Yun, and H. T. Kim, Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 6934 (2008).
- [8] K. D. Lee, Journal of Korean Solar Energy Society **26**, 55 (2006).
- [9] T. C. Grove, White paper, Advanced Energy Industries, Inc, [http://www.advanced-energy.com/poad/File/White\\_Papers/SL-WHITE5-270-01.pdf](http://www.advanced-energy.com/poad/File/White_Papers/SL-WHITE5-270-01.pdf).
- [10] D. Carter, H. Walde, G. McDonough, and G. Roche, 45th Annual Technical Conference Proceedings of the Society of Vacuum Coaters, 570 (2002).
- [11] M. I. Kang, J. W. Ryu, K. W. Kim, C. H. Kim, Y. K. Baek, D. H. Lee, and S. R. Lee, Journal of the Korean Vacuum Soc. **17**, 138 (2008).

## Effects of Surface Homogeneity on Optical Properties of Sputter-deposited AlTiO Selective Transmitting Layers

So Un Jeong<sup>a</sup>, Jung Wook Lim<sup>b</sup>, and Seung-Yun Lee<sup>a\*</sup>

<sup>a</sup>*Department of Applied Materials Engineering, Hanbat National University, Daejeon 305-719*

<sup>b</sup>*Electronics and Telecommunications Research Institute, Daejeon 305-700*

(Received October 18, 2011, Revised November 25, 2011, Accepted November 25, 2011)

Transparent dye-sensitized solar cells have been widely investigated for the application to building integrated photovoltaic system. Thin film Si-based solar cells are emerging as a substitute for the dye-sensitized solar cells because their merits of well-established manufacturing processes. Since the selective transmitting layer transmits visible light and reflects infrared light, the solar cell efficiency increases with the introduction of the selective transmitting layer. In this work, AlTiO thin films were grown as the selective transmitting layer by cost-effective sputter deposition and their transmittances were improved by controlling deposition parameters.

Keywords : Reflective sputtering, Anti-reflecting coating, Highly reflective layer, Selective transmitting layer, AlTiO

\* [E-mail] sy\_lee@hanbat.ac.kr