

## 증착 조건 변화에 따른 ZnO 박막의 c-축 배향성

### C-axis orientation of ZnO thin films on sputtering conditions

°성하윤\*, 금민중\*, 손인환\*\*, 박용욱\*\*\*, 전영하\*\*\*\*, 박용서\*, 김경환\*  
( H.Y.Seong\*, M.J.Keum\*, I.H.Son\*\*, Y.W.Park\*\*\*, Y.H.Jeon\*\*\*\*, Y.S.Park\*, K.H.Kim\* )

#### Abstract

In order to investigate the effect of deposition conditions on crystallographic properties of ZnO thin films by Facing Targets Sputtering system which can deposit thin films in plasma-free situation and change the deposition conditions in wide range. The characteristics of zinc oxide thin films on power, inter targets distance, and substrate temperature were investigated by XRD(x-ray diffractometer), alpha-step (Tencor) analyses. The excellently c-axis oriented zinc oxide thin films were obtained at sputter pressure 1mTorr, sputtering current 0.4A, substrate temperature 300°C, inter target distance 100mm. In these conditions, the rocking curve of zinc oxide thin films deposited on Glass was 3.9° .

**Key Words(중요용어)** : Facing Targets Sputtering(FTS), plasma-free, c-axis orientation, grain size

#### 1. 서 론

n형 산화물 반도체인 ZnO는 가스 종류에 따라 전기저항 변화의 상이성으로 인해 가스센서<sup>1)</sup>로 이용되고, 적외선 및 가시광선 영역에서의 고 광투과도로 인해 solar cell 수광창<sup>2)</sup>으로의 응용을 위한 연구가 활발히 진행되는 등 그 응용분야가 날로 확대되고 있다. ZnO를 상술한 용도로 응용하기 위해서는 기판에 수직인 c-축 우선 배향성을 갖는 박막의 형성이 필수적이며, 특히 ZnO 박막을 SAW filter로 응용하기 위해서는 c-축 방향으로의 박막형성<sup>3)</sup>이 가능한 증착법의 확립과 아울러 최적 증착 조건의 도출이 요구되고 있다

또한, ZnO 박막을 형성하는 방법은 sputtering<sup>4)</sup>, CVD(Chemical Vapor Deposition)<sup>5)</sup>, ion plating 등으로 제작되고 있다. CVD법은 스퍼터법보다 증착 속도는 우수하나 박막의 표면이 거칠고 고온에서 증착이 이루어지는 단점이 있다. 이에 반해 스퍼터법은 높은 증착율, 넓은 증착면적과 우수한 c-축 배향성을 갖는 양질의 막과 투명하고 치밀한 막을 얻을 수 있는 장점이 있어서 가장 폭넓게 사용되고 있는 방법이다. 우수한 표면의 평활도를 가진 조밀한 박막과 전기적 및 광학적 특성이 우수한 박막의 제조가 용이하므로 일반적으로 스퍼터법이 많이 사용되고 있다<sup>4)</sup>. ZnO 박막은 기판에 수직인 결정학적 c-축으로 우선방위현상(preferred orientation)을 나타낸다. 또한 압전특성을 이용하여 응용을 할 경우 높은 압전결합계수와 비저항이 요구되며, ZnO 박막 성장시 c-축으로 배향된 입자들의 기판에 대한 수직도가 감소할수록 압전결합계수가 떨어져 그 효율성이 낮아진다. 따라서 스퍼터법으로 ZnO 박막의 제조시 증착 조건의 변화 즉, 기판온도, 산소 가스 압, 증착속도, 투입전력 등에 따라 c-축 배향성

\* : 경원대학교 공대 전기전자공학부  
(성남시 수정구 북정동 산 65, Fax: 0342-750-5491  
E-mail : khkim@mail.kyungwon.ac.kr )

\*\* : 신성대학 전기과

\*\*\* : 국민대학교 공대 전자공학부

\*\*\*\* : J&L Tech

(c-axis orientation)이 변하게 되며 증착변수에 따른 c-축 배향성의 평가는 중요한 의미를 가진다.

본 연구에서는 ZnO 박막의 c-축 배향성을 우수하게 개선하기 위해 대향타겟식 스퍼터법을 사용하여 증착 조건에 따른 막을 증착하였다.

## 2. 실험 방법

본 실험에서는 Fig. 1과 같은 타겟 배치를 갖는 FTS(Facing Targets Sputtering)장치를 사용하여 ZnO 박막을 제작하였다. 이 FTS 장치는 기판의 위치가 타겟을 마주보고 있지 않는 플라즈마-프리 상태에 배치하고, 타겟 뒷면에 영구자석이 장착되어 타겟 표면에 수직으로 자계가 분포하게 된다. 따라서 타겟 사이에 형성되는 플라즈마의  $\gamma$ -전자를 구속하게 되며, 구속된  $\gamma$ -전자는 반사전극 역할을 하는 맞은 편 타겟으로 인해 타겟 사이를 왕복 운동하게 된다. 그러므로  $\gamma$ -전자의 이동거리가 기존의 스퍼터법 보다 월등히 길어 분위기 가스의 이온화율이 높아지며 고밀도 플라즈마가 형성되는 높은 막 증착을 할 수 있는 장점을 가지고 있다. 표 1은 본 실험의 ZnO 박막 증착 조건을 나타낸 것이다.

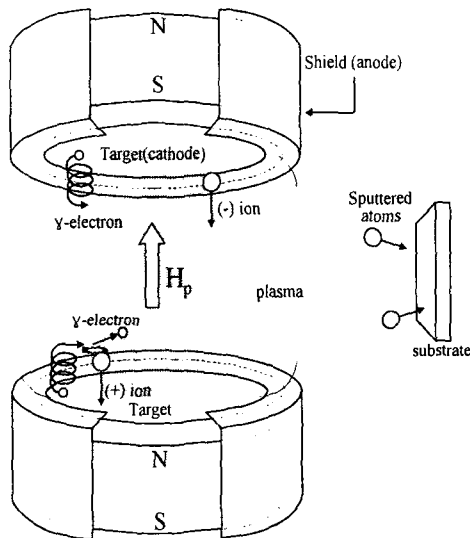


Fig. 1 Targets Schematic diagram of the Facing Targets Sputtering system

Table 1 Sputtering conditions of ZnO thin film

Deposition parameter	condition
Targets	Zn(4N, 100mm)
Substrate	slide glass
target-target distance	90, 100, 110[mm]
target-substrate distance	100[mm]
Base pressure	$2 \times 10^{-6}$ [Torr]
Working pressure	1 [mTorr]
Substrate temperature	100~300[°C]
Confining flux	200[Oe]
Power	100~300[W]

기판은 slide glass를 사용하여 다음의 세척과정을 통한 후 ZnO 박막을 증착하였다. 우선 중성세제로 기판을 깨끗이 세척한 후 기판을 증류수로 5분간 2회, IPA로 10분간 2회 초음파 세척을 하였다. 마지막으로 IPA를 hot plate에서 증발시켜 slide glass를 건조시켰다. 또한, 스퍼터링을 하기 전에 챔버내 불순물을 제거하기 위해 MFC와 main valve를 이용하고 고순도의 산소를 사용 챔버 내부의 압력을 일정하게 유지한 다음 타겟 표면에 형성된 불순물과 초기의 불안정한 상태의 플라즈마를 안정화시키기 위해 shutter를 닫은 상태에서 10분씩 presputtering을 하였으며, 그 후에 shutter를 열어 ZnO 박막을 증착하였다. 제작된 ZnO 박막의 두께는 Tencor사의 Alpha-step을 이용하여 측정하였으며, c-축 배향성을 알아보기 위해 XRD(X-ray diffractometer)를 사용하여 rocking curve를 측정  $\Delta\theta_{3\omega}$ 을 조사하였다.

## 3. 결과 및 검토

### 3.1 투입전력에 따른 증착률

Fig. 2는 기판온도 300°C, 타겟간 거리 100mm, 타겟-기판간 거리 100mm의 조건에서 투입전력에 따른 ZnO 박막의 증착률을 나타낸 것이다. 투입전력이 증가할수록 증착속도는 거의 직선적으로 비례하여 증가하고 있으며, 이는 투입전력이 증가함에 따라 증착속도가 증가하는 일반적인 경우와 잘 일치하는 결과이다.

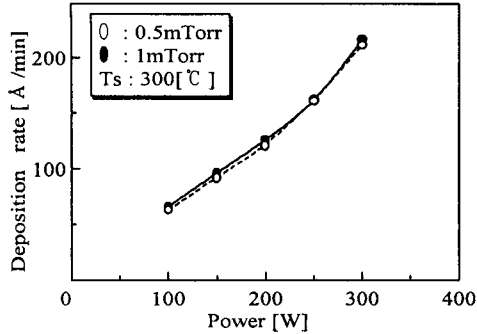


Fig. 2 Variation of deposition rate as a function of the power

### 3.2 증착 조건에 따른 결정학적 특성

Fig. 3은 증착 조건 중 기판온도 300℃, 막 두께를 3000Å로 고정시키고 투입전력에 따른 XRD회절 패턴을 나타낸 것이다. XRD 측정결과 전력이 증가할수록 (002)회절피크만이 관찰되어, (002)면의 결정성이 양호한 ZnO 박막이 증착 되었음을 알 수 있었다. 이는 투입전력이 증가하면 타겟으로부터 방사되어 기판에 충돌하는 입자들의 에너지가 충분히 증가하므로 우수한 결정질 박막을 증착 할 수 있게 된다. 또한 전력이 낮을 때 증착한 박막은 증착속도가 낮아 결정성이 좋지 않은 실효성이 없는 막으로 사료된다. 본 실험에서는 산소 가스압 1mTorr, 투입전력이 200W에서 결정성이 우수한 막을 제작하였다.

Fig. 4는 투입전류 200W, 기판온도 300℃, 타겟간 거리변화에 따른 결정성의 변화를 나타낸 것이다. XRD측정결과 타겟간 거리 100mm에서 최대피크를 확인할 수 있었다. 이는 타겟간 거리가 변화함에 따라 고 에너지 입자를 구속하는 구속자계의 값이 변하게 되는데 타겟간 거리가 90mm(240Oe), 110mm(190Oe)일 때는 막 증착에 관여하는 산소 음이온의 potential energy가 감소, 증가하게 되어 막의 결정성에 악영향을 미치는 것으로 사료된다. 또한 타겟간 거리가 100mm(200Oe)일 때는 구속자계의 값이 적절한 값으로 사료되어 결정성이 양호한 값을 갖는 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 5는 기판온도에 따른 결정성의 변화를 나타낸 것이다. XRD측정결과 기판온도 300℃에서 측정 한 값이 최대피크를 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 이는 기판온도가 증가함에 따라 스퍼터된 입자

들이 기판 상에서 이동할 수 있는 능력이 증가하여 에너지적으로 안정한 위치를 충분히 찾아 갈 수 있기 때문에 박막의 결정성이 증가하는 것으로 사료된다. 이의 결과로부터 200W, 기판거리 100mm, 기판온도 300℃에서 증착한 막의 결정성이 양호하다는 것을 확인할 수 있었다.

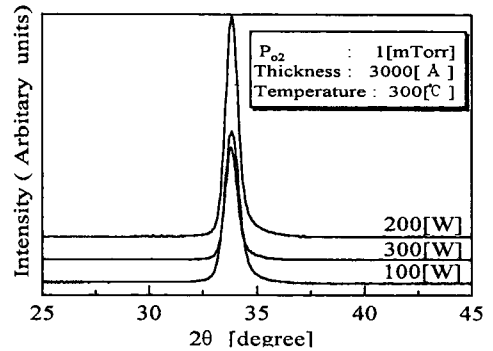


Fig. 3 Variation of XRD pattern of ZnO films as a function of the power

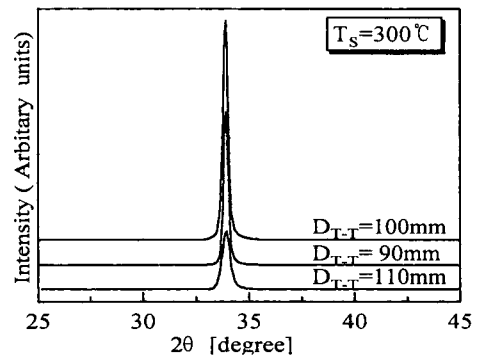


Fig. 4 Variation of XRD pattern of ZnO films as a function of inter targets distance

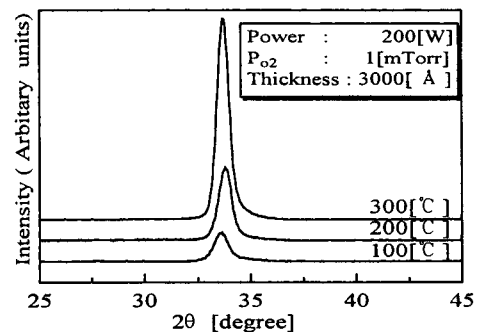


Fig. 5 Variation of XRD pattern of ZnO films as a function of substrate temperature

### 3.2 증착 조건에 따른 c-축 배향성

증착 조건에 따른 결정학적 특성에서 양호한 값을 고정시키고서 두께를 5000Å로써 실험한 결과를 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6은 타겟간 거리변화에 따른 ZnO 박막의  $\Delta\theta_{50}$ 과 결정입경<D>를 나타낸 것이다. 그림에 나타낸 것과 같이 결정성이 양호한 ZnO 박막을 제작하기 위해서는 적절한 구속 자계의 값이 요구되어지는데 이 값이 타겟간 거리 100mm일 때가 최적의 조건이라 생각된다. 또한 XRD로 분석한 결과를 토대로 결정 입경 <D>를 식 1에 의하여 구하고 그래프에 나타내었다. 본 실험에서는 300W에서 증착된 막의 c-축 우선 배향성이 가장 우수했으며 이때의 결정 입경은 306Å이다.

$$\langle D \rangle = 0.94\lambda / X_{rad} \cos \theta \text{----- (1)}$$

여기서, D : 평균결정지름

$\lambda$  : X-ray 반사파장(=1.5405Å)

$\theta$  : (002)면에 대한 회절각

$X_{rad}$  : (002)회절선의 반가폭(FWHM)

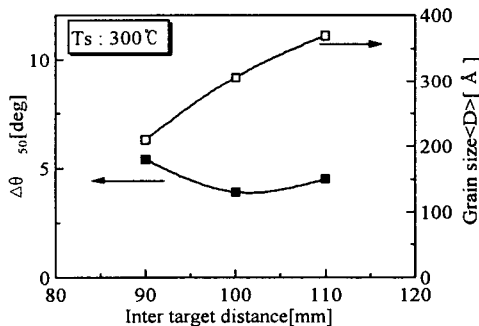


Fig. 6 Variation of  $\Delta\theta_{50}$  and grain size as a function of the inter targets distance

### 4. 결 론

대향타겟식 스퍼터법에 의한 ZnO 박막 제작에 있어서 증착 조건(타겟간 거리, 투입전력, 기판온도 등)에 따른 c-축 배향성에 관한 실험을 한 결과 다음과 같은 연구 결과를 얻었다.

1. 투입전력의 증가에 따라 증착속도는 선형적인 증가를 보였으며 기판에 수직인 (002)면의 intensity

가 증가하여 결정성이 양호한 막을 제작하였다.

2. 타겟간 거리가 90mm일 때는 막 증착에 관여하는 산소 음이온의 potential energy가 감소하게 되어 결정성에 악영향을 미치게 되고, 110mm일 때는 산소 음이온의 potential energy가 증가하게 되어 결정성이 좋지 않은 것을 확인할 수 있었다. 본 실험에서는 100mm일 때가 적절한 구속자계인 2000eV의 값을 가지게 되어 양호한 결정성을 확인하였다.
3. 기판온도는 ZnO 박막의 증착속도에 큰 영향을 미치지 않으나, 기판온도의 증가에 따라 양호한 결정의 성장이 형성되었다.
4. 스퍼터링 압력 1mTorr, 기판온도 300°C, 투입전력 200W, 타겟간 거리 100mm, 박막두께 5000Å의 조건에서 증착한 막의 결정성이 양호하였고 Grain size가 306Å인  $\Delta\theta_{50}$ 이 3.9°의 양호한 c-축 배향성을 가진 ZnO 박막을 성장시킬 수 있었다.

### 참고 문헌

- [1]. U.Lampe and Jorg Muller, "Thin-film oxygen sensors made of reactive sputtered ZnO", Sensors and Actuators, vol.18, pp.269-284, 1989
- [2]. Willson W.Wonas, A.Yamada, and K.Takashi, "Electrical and optical properties of boron-doped ZnO films for solar cells grown by metalorganic chemical vapor deposition", J. Apply. Phys., vol.70, no.11, pp.7119-7123, 1991
- [3]. G.Carnisio, F.Garbassi, G.Petrini and G. Parravano, "Isotropic Mixing in Carbon Monoxide Catalized by Zinc Oxide", J. Catalysis, vol.54, pp.66-80, 1978
- [4]. 김 경환 외 4인, "직류 대향타겟스퍼터링법으로 제작된 ZnO 박막의 c-축 배향성", 한국표면공학, vol.33, no.1, 2000
- [5]. S.K.Ghandhi and Robert J.Field, "Highly oriented zinc oxide films grown by the oxidation of diethylzinc", Appl. Phys. vol.37, no.5, pp.449-451, 1980