

ZnO:Al투명전도막의 전기적 특성에 미치는 Bias 전압의 영향

박강일*, 김병섭*, 임동건**, 이수호*, 곽동주*
경성대학교*, 충주대학교**

Effect of substrate bias on electrical properties of ZnO:Al transparent conducting film

Kang-il Park*, Byung-Sub Kim*, Dong-Gun Lim**, Su-Ho Lee*, and Dong-Joo, Kwak*
Kyungseong Uni*, Chungju National Uni.**

Abstract

Al doped Zinc Oxide(ZnO:Al) films, which is widely used as a transparent conductor in optoelectronic devices such as solar cell, liquid crystal display, plasma display panel, thermal heater, and other sensors, were prepared by using the capacitively coupled DC magnetron sputtering method. The influence of the substrate temperature, working gas pressure, discharge power and doping amounts of Al on the electrical, optical and morphological properties were investigated experimentally. The effect of bias voltage on the electrical properties of ZnO thin film were also studied. Films with lowest resistivity of $5.4 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ have been achieved in case of films deposited at 1mtorr, 400°C with a substrate bias of +10V for 840nm in film thickness.

Key Words : ZnO:Al, Bias voltage, Resistivity, Transmittance, Sputtering

1. 서 론

투명전도막은 높은 전기전도특성과 400~800nm 파장의 가시광 영역에 대한 광 투과율이 우수한 막을 말한다. 투명전도막은 태양전지, 각종 평판 디스플레이, 가스센서 등의 다양한 분야에서 이용되고 있으며 현재 낮은 저항률을 장점으로 가지는 ITO 박막이 가장 널리 이용되고 있으나, ZnO:Al 박막은 환원성 분위기에 대한 내성, 가시광 영역에서의 높은 광 투과율과 저렴한 가격으로 ITO를 대체할 투명전도막 재료로 주목받고 있다.

ZnO 박막은 비화학양론적 결합구조, 넓은 band gap, 광학적 투광성 그리고 큰 압전상수 등의 특성으로 인하여 가스센서, micro-actuators, 투명전도막 등으로 응용되고 있으며, ZnO 박막의 실용화를 위해 ZnO 박막의 결정성, 광학적 특성 그리고 전기적 특성에 미치는 증착 조건에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다.

본 연구에서는 PDP 투명전극의 응용을 위하여 ZnO:Al 박막을 DC magnetron sputtering법으로 제작, 평가하였다. 박막 제작시 기판온도, 동작압력, Al 불순물의 도핑율 및 전력 등을 가변 하여 최적의 조건을 도출하고자 하였으며, sputter 선정 효과 및 ITO 에 비교될만한 낮은 저항률을 얻기

위하여 도출된 최적의 조건에서 bias 전압을 인가하여, bias 전압에 따른 저항률의 변화를 고찰하였다.

2. 실험

2.1 실험장치

진공조는 SUS304로 직경 270 mm, 높이 450 mm의 직원통의 형태이며, 방전중 진공조 내의 온도 상승을 억제하기 위하여 진공조를 수냉 하였다. 진공조는 로터리 펌프(Rotary Pump)와 유확산 펌프(Oil Diffusion Pump)를 사용하여 초기진공을 약 1×10^{-6} torr까지 배기한 후, Mass Flow Controller(YOUNGSIN ENC, GFC- 103)로 아르곤 가스를 주입하여 원하는 압력을 조절하였다. 동작 가스로는 순도 99.999 %의 아르곤 가스를 사용하였으며, 동작압력은 1~20 mtorr의 범위였다. 전극의 구조는 평판형 마그네트론 방식 이었고, 박막 제작 실험을 위해 사용된 ZnO:Al 타겟(Super Conductor Materials, USA)은 순도 99.9 %, 직경 3인치, 두께 1/4인치, ZnO와 Al₂O₃는 각각 99:1wt.%, 98:2wt.%, 97:3wt.% 로 제작되었다. 전극 간격은 예비실험을 통하여 안정된 글로우 방전 플라즈마의 형성과 우수한 막 특성을 보인 5cm로 고정하였다. 기판 bias는 독립된 DC power supply로 공급하였으며, 공급전압은 -60~10 V의 범위였다. 기판으로는 코닝글래스 1737을 유기세척법으로 세척하여 사용하였고, 전력해석기(Voltech, PM3300)를 통하여 공급전력의 고정 및 전압, 전류를 측정하였다. 또한, 제작된 ZnO:Al 박막은 X-ray diffractometer(Rigaku Co., D/max 2100H, Japan), 4-point probe(CMT-ST1000), UV spectrophotometer(Hitachi Co. U-3000, Japan), α -step(Veeco, DEKTAK³ ST) 등의 장비를 사용하여 각각의 특성을 측정하고 평가하였다. α -step을 사용하여 기판온도, 동작압력 등의 다양한 증착 조건에서 증착된 ZnO:Al 박막의 두께 및 증착률을 조사하였으며, X-ray diffractometer로 결정성 및 결정 방향을 조사하기 위하여 20°~80°의 범위의 회절각(2 θ)에서 X선 회절분석을 하였다. 전기 비저항은 4-point probe법을 이용하여 측정하였으며, 광 투과도 및 광 흡수도 등과 같은 광 특성을 측정하기 위하여 UV spectrophotometer로 가시광선

영역인 400 nm에서 800 nm의 파장 범위까지 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

ZnO:Al 박막을 투명전극으로 응용하기 위하여 기판온도, 가스압력, 방전전력, Al함량 등의 다양한 증착조건을 가변하며 최적의 증착조건을 도출하고자 하였고, 도출된 최적의 조건에서 선정효과 및 저항특성의 개선을 위하여 bias전압을 인가하였다. 즉, 예비실험의 결과 투명전도막의 중요한 특성이 되는 저항률과 가시광 영역의 광 투과율은 Al₂O₃가 2% 도핑된 타겟, 방전전력 40W에서 가장 우수한 것으로 평가되었으며, 따라서 본 연구에서는 모든 박막을 40W의 방전전력, 도핑농도2%인 타겟으로 증착하였다[1].

그림 1에 기판온도에 따른 ZnO:Al박막의 X선 회절분석의 결과를 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 기판온도 RT~500°C의 범위에서 박막의 회절피크는 기판온도에 관계없이 (002)면의 우선배향성을 보여주며, (002)회절피크에서의 2 θ 값은 standard ZnO crystal(34.45°)과 거의 일치하였다. 400°C까지의 범위에서는 기판온도의 증가와 함께 회절피크의 강도가 증가한다. 이것은 기판온도의 상승에 따라 기판에 도달한 sputter입자의 확산이 용이해져 박막의 결정화가 촉진된 것으로 생각되며, 500°C에서 회절피크가 감소하는 것은 기판온도의 과도한 증가로 인한 증착된 입자의 증발현상에서 기인한 것으로 사료된다.

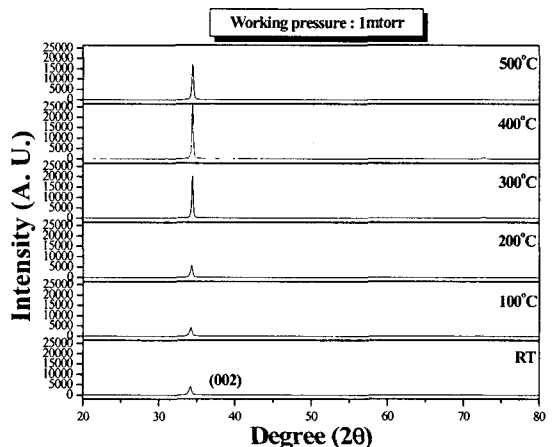


그림 1. 기판온도에 따른 X 선 회절 패턴.

그림 2는 기판온도에 따른 ZnO:Al박막의 저항률과 증착률의 특성을 나타낸다.

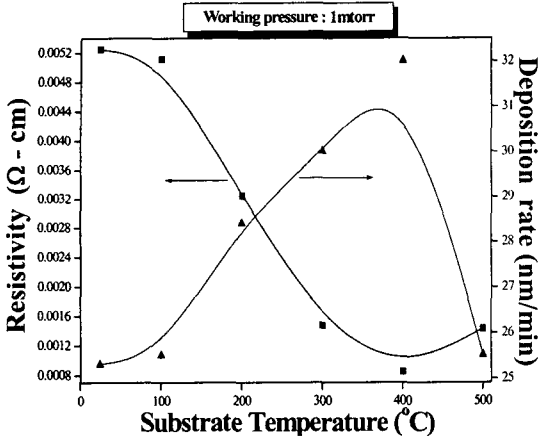


그림 2. 기판온도에 따른 저항률과 증착률.

그림으로부터 박막의 저항률은 400°C까지의 온도 범위에서는 온도의 증가와 함께 감소하며 500°C에서는 다시 증가하고, 증착률은 이와 반대의 경향을 보임을 알 수 있다. 400°C까지의 온도범위에서 저항률이 감소하는 것은 기판온도증가에 따른 결정화의 촉진과, 증착률이 증가함으로써 격자 결함이 증가하여 발생한 캐리어의 증가 때문으로 생각된다. 또한, 500°C에서는 증착입자의 증발현상에 따른 결정성장의 억제 및 증착률의 감소로 인한 결함의 감소로 저항률이 증가한 것으로 보이며, 이러한 결과는 앞의 XRD의 분석결과와 잘 일치하고 있다.

그림 3은 동작압력에 따른 ZnO:Al박막의 저항률과 증착률을 나타내었다. 그림에서 보듯이 동작압력의 감소와 함께 저항률은 감소하고 증착률은 증가한다. 이것은 동작압력이 감소함에 따라 sputter 된 원자가 가스 입자에 산란될 확률이 감소하여 증착률이 증가함으로써 결함이 증가하고, sputter 입자의 평균자유행정이 길어지게 됨으로써 원자의 에너지가 커진 결과 결정의 성장이 촉진되어 저항 특성이 개선된 것으로 사료된다.

이상의 결과들로부터 2%의 Al₂O₃함량, 1mtorr의 동작압력, 400°C의 기판온도, 40W의 방전전력이 최적의 증착조건으로 선정 되었으며, 도출된 증착 조건에서 기판바이어스전압을 인가하였다.

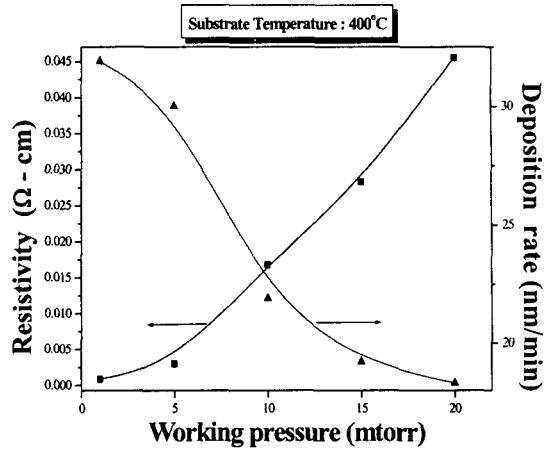


그림 3. 동작압력에 따른 저항률과 증착률.

일반적으로 bias전압을 인가할 때 negative bias를 인가할 경우 ion충격에 의해 불순물 등이 재스퍼터 되어 도전을이 개선되지만 과도한 bias의 인가는 박막내의 Ar이온의 매몰과 재스퍼터로 인한 박막의 조성변화로 저항률을 증가시키며, positive bias전압에서는 electron충격으로 sputter원자에 에너지를 전달함으로써 electron mobility를 증가시켜 저항특성을 개선시키는 것으로 알려져 있다[2]. 본 실험의 경우 그림 4에서 보듯이 bias전압에 따른 저항률 특성은 대부분 기존의 연구 결과와 일치함을 알 수 있었다.

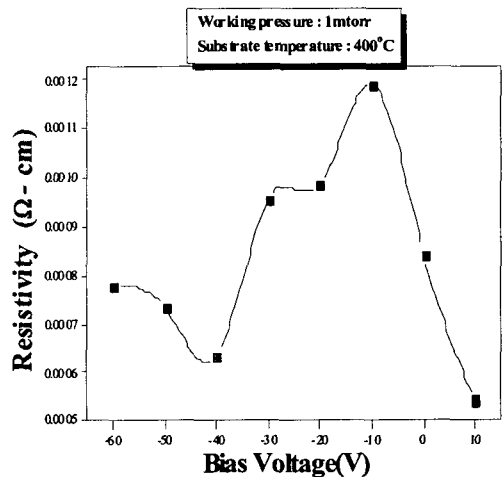


그림 4. Bias전압에 따른 저항률.

그림은 negative bias전압에 대하여 -10V까지는 저항률이 증가하고, -40V까지는 감소하다가 -50V에서는 다시 증가하며, positive bias전압에서는 저항률이 감소한 것을 보여주고 있다. -10V에서 저항률이 증가하는 것은 다른 연구결과들과는 일치하지 않는 결과였다. 본 실험의 경우에는 대략 -10V정도가 전류가 zero가 되는 floating전위로 bias의 영향이 없는 것으로 보이며, 그림 5의 bias 전압에 따른 전류곡선으로부터 보여지는 floating 전위와 일치하는 것을 알 수 있다. 가장 낮은 저항률은 10V의 bias전위에서 $5.4 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 였다.

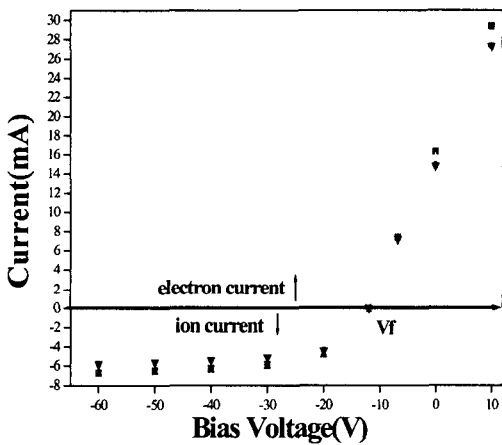


그림 5. Bias전압에 따른 전자전류 및 이온전류.

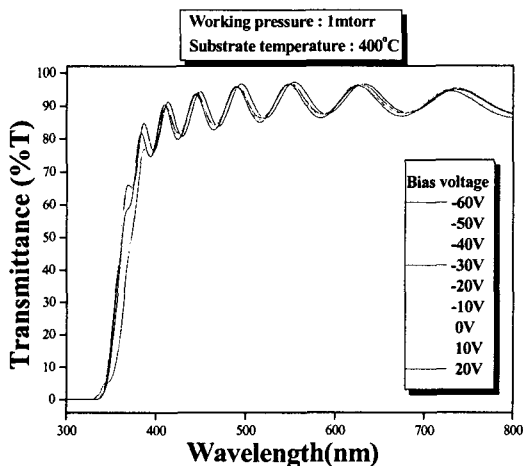


그림 6. Bias전압에 따른 광 투과도 스펙트럼.

그림 6은 bias전압에 따른 광 투과도 스펙트럼을 나타내었다. 그림으로부터 자외선 영역의 optical edge 및 광 투과율이 유사함을 알 수 있다. 본 실험의 경우 여러 증착조건과 무관하게 400~800nm 영역의 가시광 영역에서 평균 90%정도의 투과율을 보였다. 저항률이 가장 낮은 증착조건에서의 광 투과율은 90.7%였다.

4. 결론

본 연구에서는 투명전극의 응용을 위하여 ZnO:Al박막을 제작 평가하였다. 가장 우수한 특성은 1mtorr의 동작압력, 400°C의 기판온도, 40W의 방전전력, 2%의 Al_2O_3 함량에서 (002)방향의 우수한 성장, $9.42 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 저항률, 90.88%의 투과율을 나타내었으며, 여기에 10V의 bias전압을 인가하였을 때 ZnO:Al박막은 90.7%의 광 투과율과 $5.4 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 저항률을 나타내어, bias전압의 인가로 저항특성이 개선되었음을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구 (R01-2002-00000342-0)지원으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] K. I. Park, B. S. Kim, D. G. Lim and D. J. Kwak, "Some properties of ZnO:Al transparent conducting films by dc magnetron sputtering method", Proceeding of the KIEEME(in Korean) Annual Summer Conference, Vol. 4, No. 1, p. 143, 2003.
- [2] Brian Chapman, "Glow Discharge Process-sputtering and Plasma Etching", A WILEY-INTERSCIENCE PUBLICATION.
- [3] T. W. Choi and S. C. Yoo, "Electrical and mechanical properties of ceramics", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 15, No. 1, p. 10, 2001.
- [4] Ch. Sujatha, G. Mohan Rao, and S. Uthanna, "Characteristic of indium tin oxide films deposited by bias magnetron sputtering", Materials Science and Engineering, B. 94, p. 106-110, 2002.