

## RF 스퍼터를 이용하여 미리 가열된 기판을 냉각하며 증착한 ZnO 박막의 c축 배향성 향상에 관한 연구

박성현, 이순범, 신영화, 이능현, 지승한, 권상직  
경원대학교 전기전자공학과

### Improvement of c-axis orientation of ZnO thin film prepared on pre-heated substrate with cooling during RF sputter deposition

Sung-Hyun Park, Soon-Beom Lee, Young-Hwa Shin, Neung-Heon Lee, Seung-Han Ji, Kwon-Sang Jik  
Department of electric & electronics engineering in Kyungwon university

**Abstract** - In this paper, ZnO thin films were prepared on p-Si(100) by RF magnetron sputtering. Before the deposition, the substrates were pre-heated to 500, 400, 300, 200 °C or not. During the deposition, the substrates were cooled down naturally or kept and then the films were investigated by XRD(X-ray diffraction) and SEM (scanning micro scope). It is showed the most outstanding result that the film was prepared on the substrate were cooled from 400 °C. When the substrate was cooled from a certain temperature during deposition, it could be improve the c-axis orientation and useful for application of SAW(surface acoustic wave) filter and FBAR(film bulk acoustic wave resonator) device.

#### 1. 서 론

ZnO 박막은 결정구조의 이방성 및 비화학양론적 결합 구조, 넓은 밴드 갭 에너지, 광학적 투광성, 큰 압전상수 등의 특성으로 인하여 SAW 필터 및 BAW 소자, 마이크로 액츄에이터, 가스 센서, 태양전지용 투명전극, 발광 다이오드 등에 널리 응용되고 있다.<sup>[1-5]</sup>

ZnO 박막을 형성하는 방법으로는 e-beam evaporation 법과 CVD(chemical vapor deposition) 법, 스퍼터링 법 등이 주로 사용되고 있으며, 특히 ZnO 타겟을 이용하여 반응성 가스로 Ar과 O<sub>2</sub>의 혼합가스를 사용하는 RF 마그네트론 스퍼터링 법은 장치가 단순하고, 높은 증착율과 넓은 증착면적을 가지며, 우수한 방향성을 갖는 양질의 투명하고 치밀한 막을 얻을 수 있는 장점이 있다.<sup>[6-7]</sup>

RF 마그네트론 스퍼터링 법을 이용하여 증착된 ZnO 박막은 각기 다른 여러 응용분야의 요구에 따라 RF 전력과 증착압력, 혼합가스 비율, 기판온도, 타겟과 기판 간의 거리 등과 같은 증착 변수에 따른 박막의 결정성 및 표면형상, 전기적 혹은 광학적 특성 등을 고려하여 연구되어져 왔다. 특히, 최근 정보통신 산업의 급속한 발전으로 인하여 이동통신 및 위성통신에 사용되는 고주파 대역의 필터소자로써 SAW 필터와 FBAR 소자 등에 응용되기 위해서는 우수한 c 축 배향성을 갖는 ZnO 박막이 요구되고 있다. 또한, ZnO 박막의 c 축 배향성을 향상시키기 위해서 ALD(atomic layer deposition)나 PLD(pulsed laser deposition)를 RF 스퍼터와 연계해서 이용하는 2 단 증착법과 같은 연구가 많이 진행되고 있다.<sup>[8-12]</sup>

본 연구에서는 ZnO 박막을 SAW 필터나 FBAR device에 응용하기 위한 목적으로 증착 전 가열된 기판에 RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 ZnO 박막을 자연냉각 시키면서 증착하였으며, 이를 XRD 와 SEM을 이용하여 각 조건에 따른 증착된 ZnO 박막의 결정성 및 미세구조를 분석하였다.

#### 2. 본 론

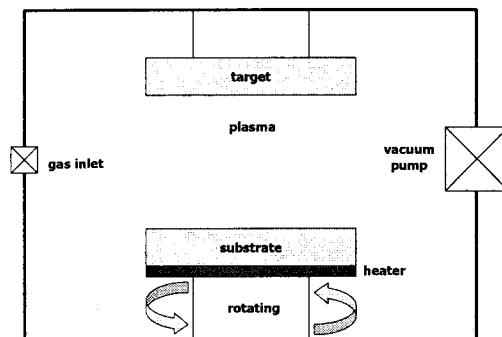
##### 2.1 실험방법

본 연구에서 사용한 RF 마그네트론 스퍼터의 구조는 그림 1과 같다. 기판으로는 4인치 p-Si(100) 웨이퍼를 아세톤과 알코올, 초순수에 세척하여 질소가스에 송풍건조 후 사용하였고, 타겟 물질로는 순도 99.999%, 4 인치 ZnO 타겟(고순도화학)을 사용하였다. 증착 전 진공 챔버 내의 진공은 5.0×10<sup>-7</sup> Torr 이하로 유지한 후 MFC(mass flow controller)를 이용하여 반응성 가스인 Ar과 O<sub>2</sub>의 혼합가스를 주입하였다. 증착 전에 기판온도를 온도조절기(temp. controller)를 이용하여 일정 온도에 맞춘 뒤, RF 전력 200W, 증착압력 15 mTorr, 기판과 타겟 간의 거리 10.5 cm에서 기판을 자연냉각 시키면서 증착하였다. 증착 중 일정하고 균일한 박막을 얻기 위해 기판을 15 rpm의 속도로 회전시켰다. 표 1에 ZnO 박막의 기본 증착조건과 기판온도의 변화 조건을 나타내었다. 각 증착조건에서 제작된 박막은 Alpha-step(Tencor사)을 이용하여 두께를 측정하였고, XRD(D-MAX2200, Rigaku사)를 이용하여 2θ와 rocking curve(θ) 등을 측정하여 결정성을 조사하였으며, SEM(S4700, Hitachi사)을 이용하여 표면형상 및 미세구조를 관찰하였다.

##### 2.2 결과 및 고찰

본 연구에서는 RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 미리 가열된

기판을 냉각하며 증착하는 방법이 ZnO 박막의 c축 배향성에 미치는 영향을 알아보기 위해 증착하는 동안 기판의 온도를 상온으로 유지(25 °C, RT), 400 °C로 유지(T400), 500 °C에서 자연냉각(T500NC), 400 °C에서 자연냉각(T400NC), 300 °C에서 자연냉각(T300NC), 200 °C에서 자연냉각(T200NC)과 같은 방법으로 변화시켰다.



<그림 1> RF magnetron sputter의 구조.

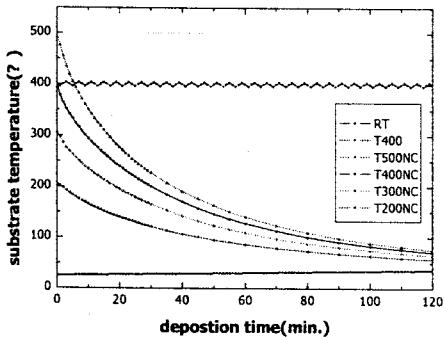
<표 1> ZnO 박막의 증착 조건.

Conditions	Value
RF power	200 W
working pressure	15 mTorr
working gas(ratio)	Ar:O <sub>2</sub> (50:50)
gas flow rate	both 10 sccm
distance	10.5 cm
rotation speed	15 rpm
base pressure	low 10 <sup>-7</sup> Torr
deposition time	2 hrs
substrate temperature	RT 유지 400 °C 유지 500 °C to RT, NC 400 °C to RT, NC 300 °C to RT, NC 200 °C to RT, NC
* RT(room temperature)	
* NC(naturally cooling)	

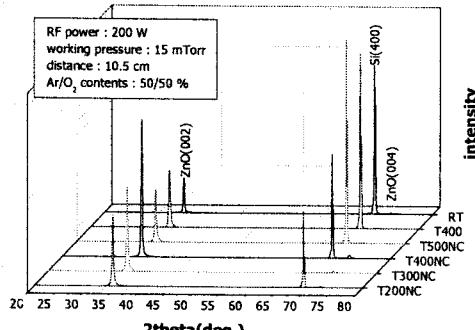
그림 2에 각 조건 별 증착시간에 따른 기판온도의 변화를 나타내 있다. 기판을 상온으로 유지하며 2시간 동안 증착한 경우에는 플라즈마(plasma)의 영향에 의해 기판온도는 25 °C에서 약 40 °C 이상으로 증가하였고, 400 °C로 유지한 경우에는 400 °C 부근에서 ±4 °C 이내로 ripple이 발생하였다. 증착 전 기판을 500 및 400, 300, 200 °C로 가열한 뒤 증착 시작과 동시에 자연냉각 시킨 경우에는 2시간 증착 뒤 기판온도는 약 76-58 °C를 나타내었다.

그림 3에는 각각의 기판온도 변화에 따라 증착된 ZnO 박막의 XRD 2θ 측정 결과를 나타내었고, 그림 4에는 XRD rocking curve(θ)와 FWHM(full width half maximum) 값을 나타내었으며, 그림 5에는 각각의 기판온도의 변화에 따라 증착된 ZnO 박막의 SEM 관측 결과를 나타내었다. 다른 조건의 시편들에 비해 T400NC의 XRD(2θ) 상의 peak 값이 가장 높게 나타났으며, c축 우선 배향성 정도를 나타낸 XRD rocking curve(θ)의 FWHM 값도 T400NC가 가장 좋은 결과를 보였다. 이는 타겟에서 스퍼터링 된 입자가 기판에 도달하였을 때, 증착 초기의 높은 기판온도로 인하여 입자들의 표면 이동도가 증가하게 되고, 입자 간의 결합 에너지에도 충분한 여유를 주게 되어 입자 간의 결합이 매우 용이하게 되며, 이는 입경이 작고 조밀한 층을 생성하고, 이러한 밀도가 높은 층은 이후 쌓여

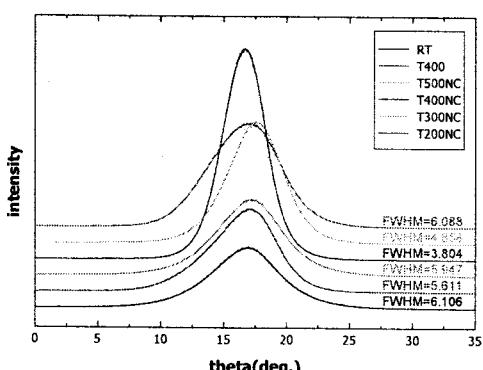
지는 ZnO 층의 결정성을 향상시키는 것으로 추정된다. 하지만 T400과 같이 기판의 온도가 증착 중 높은 온도로 계속 유지될 경우 과도한 에너지로 인해 입자들이 결합보다 열에 의한 충발 현상이 발생하여 결정성이 떨어지는 것으로 생각된다. 이러한 결과는 SEM 관측 결과에서도 볼 수 있는데, (d) T400NC의 경우 ZnO (002) 방향의 결정입자들의 입경이 다른 시편들에 비해 더 작고 조밀하게 관측되었다. (b) T400의 경우 기판의 높은 온도가 증착 중 계속 지속되어서 열에 의해 뭉쳐진 입자들을 볼 수 있다. (a) RT와 (b) T200NC를 제외하고 전체적으로 silky warm 현상이 관측되었다. 특히 (d) T400NC의 경우가 가장 많았는데, 이는 기판의 온도가 200 °C를 초과할 때부터 나타나고, ZnO (002)의 결정성에는 크게 영향을 미치지 않은 것으로 판단된다.



<그림 2> 증착시간에 따른 기판의 온도변화.



<그림 3> ZnO 박막의 XRD 2θ 측정 결과.



<그림 4> ZnO 박막의 XRD rocking curve( $\theta$ ) 측정 결과 및 반가폭.

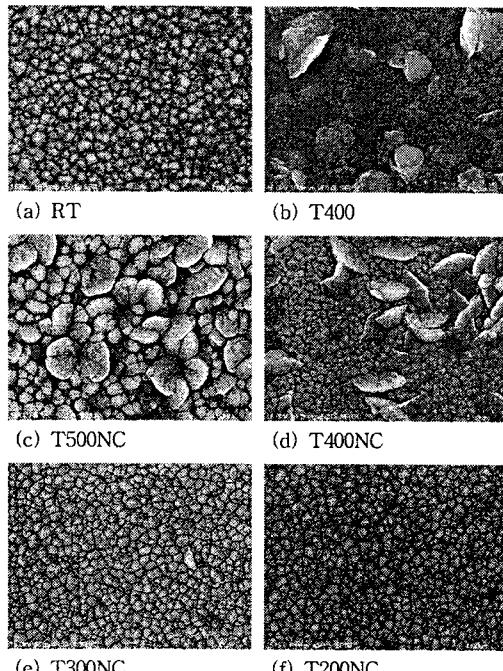
### 3. 결 론

본 연구에서는 ZnO 박막을 SAW 필터나 FBAR 소자에 적용하기 위한 목적으로 RF 마그네트론 스퍼터링 법을 이용하여 증착 중 기판을 상온 및 400 °C로 유지하거나, 초기온도 400 °C 및 400 °C, 300 °C, 200 °C에서 상온까지 자연냉각 시키면서 증착하였고, 이를 XRD와 SEM을 이용하여 증착된 ZnO 박막의 결정성 및 미세구조를 분석하였다.

기판의 온도를 상온이나 400 °C를 유지하면서 증착한 ZnO 박막에 의해 증착 전에 기판을 일정온도로 가열한 뒤 상온까지 자연냉각 시키면서 증착한 ZnO 박막의 경우가 XRD 2θ의 peak 값이나 rockin

g curve( $\theta$ )의 FWHM 값이 보다 우수하게 나타났다. 이는 증착초기에 일정온도일 때, 밀도가 높은 조밀한 층을 형성시켜 이후 쌓여지는 ZnO 박막의 결정성을 향상하는 것으로 판단된다.

특히, 기판을 400 °C에서 상온까지 자연냉각 시키면서 증착한 ZnO 박막의 경우 c축 배향성을 나타내는 XRD rocking curve( $\theta$ )의 FWHM 값이 약 3.8° 정도로 매우 우수하게 나타났으며, 향후 이를 SAW 필터나 FBAR 소자에 적용할 경우 보다 우수한 RF 특성을 가질 것으로 예상된다.



<그림 5> ZnO 박막의 표면 미세구조.

### [참 고 문 헌]

- [1] F. R. Boom, D. J. Yntema, F. C. M. Van De Pol, M. Flwenspoek, J. H. J. Fluitman and Th. J. A. Popma, "Thin-film ZnO micro-mechanical actuator at low frequencies", Sensors and Actuators., Vol. A21-A23, p. 226, 1990.
- [2] S. Pizzini, N. Butta, D. Narducci, and M. Palladino, "Thick film ZnO resistive gas sensors", J. Electrochem. Soc., Vol. 136, No. 7, p. 1945, 1989.
- [3] Yasuhiro Igasaki and Hiromi Saito, "Substrate temperature dependence of electrical properties of ZnO:Al epitaxial films on sapphire(1210)", J. Appl. Phys., Vol. 69, No. 4, p. 2190, 1991.
- [4] H. Nanto, T. Minami, S. Shiooi, and S. Takata, "Electrical and optical properties of zinc oxide thin films prepared by magnetron sputtering for transparent electrode applications", J. Appl. Phys., Vol. 55, No. 4, p. 1029, 1984.
- [5] R. Wang, L. L. H. King, and Arthur W. Sleight, "Highly conducting transparent thin films based on zinc oxide", J. mater. Res., Vol. 11, No 7, p. 1659, 1996.
- [6] T. Shiosaki, S. Ohnishi and A. Kawabata, "Optical properties of single-crystal-line ZnO film smoothly CVD on intermediate sputtered thin ZnO film on Sapphire", J. Appl. Phys., Vol. 50, No. 5, p. 3113, 1979.
- [7] S. Maniv and A. Zangvil, "Controlled texture of reactively RF sputtered ZnO thin film", J. Appl. Phys., Vol. 49, p. 2787, 1978.
- [8] 이종덕, 송준태, "RF magnetron sputtering 법으로 ZnO 박막 제조시 기판온도에 따른 c축 배향성에 관한 연구", 전기전자재료학회 논문지, Vol. 9, No. 2, p. 196, 1996.
- [9] 박성현, 추순남, 이능현, "압전층의 2단 증착법을 이용한 체적 음향파 박막형 공진기의 제작과 성능향상에 관한 연구", 대한전기학회 논문지, Vol. 54C, No. 7, p. 308, 2005.
- [10] 신영화, 권상직, 윤영수, "ALD와 RF 마그네트론 스퍼터링을 이용한 FBAR 소자의 ZnO 박막증착 및 특성", 전기전자재료학회 논문지, Vol. 18, No. 2, p. 164, 2005.
- [11] Jae-Won Kim, Hong-Seong Kang and Sang-Yeol Lee, "Effect of Deposition Rate on the Property of ZnO Thin Films Deposited by Pulsed Laser Deposition", J. Elec. Eng. & Tech., Vol. 1, No. 1, p. 98, 2006.