

---

# 기판 온도가 ZnO 박막의 특성에 미치는 영향

정양희\* · 권오경\*\* · 강성준\*\*\*

Influence of the Substrate Temperature on the Characterization of ZnO Thin Films

Yang Hee Joung\* · Oh Kyung Kwon\*\* · Seong Jun Kang\*\*\*

---

본 연구는 전남대학교 (구 여수대학교) 2005년도 교내연구지원비에 의하여 연구되었음.

---

## 요 약

ZnO 박막을 RF sputtering 법을 이용하여 제작한 후, 기판 온도에 따른 결정성, 표면 형상, c 축 배향성, 박막의 밀도 등을 조사하여 압전 소자로의 적용 가능성을 조사하였다. 본 연구에서는 Ar/O<sub>2</sub> 혼합비 70/30, sputtering 파워 125 W, 공정 압력 8 mTorr, 기판 타겟간 거리 70 mm 로 공정 변수를 고정시키고, 기판 온도를 상온에서 400°C 까지 변경하면서 ZnO 박막을 증착하였다. 기판온도가 300°C 일 때, (002) 피크의 상대 강도비 ( $I_{(002)}/I_{(100)}$ ) 가 94% 로 가장 크게 나타났으며, 이때의 반가폭은 0.571° 이었다. SEM 과 AFM 을 통한 표면 형상은 300°C 일 때 균일한 입자형태를 띄면서 4.08 nm 의 가장 우수한 표면 거칠기를 나타내었다. ZnO 박막의 밀도는 기판 온도가 상온에서부터 300°C 까지 상승함에 따라 증가하는 추세를 나타내었으며, 이 후 기판 온도가 400°C 로 증가하면 다시 감소하는 경향을 나타내었다.

## ABSTRACT

We fabricated ZnO thin film successfully by using RF magnetron sputtering and investigated its potential for being utilized as the key material of piezoelectric device with the characterization of ZnO thin film such as crystallinity, surface morphology, c-axis orientation, film density. In thin study, Ar/O<sub>2</sub> gas ratio is fixed 70/30, RF power 125W, working pressure 8mTorr, distance between substrate and target 70mm, but the substrate temperature is varied from room temperature to 400°C. The relative intensity ( $I_{(002)}/I_{(100)}$ ) of (002) peak in ZnO thin film deposited at 300°C was exhibited as 94%, then its FWHM was 0.571°. Also, from the surface morphology evaluated by SEM and AFM, the film deposited at 300°C showed uniform particle shape and excellent surface roughness of 4.08 nm. The tendency of ZnO thin film density was exhibited to be denser with increasing substrate temperature but slightly decreased at near 400°C.

## 키워드

ZnO 박막, 압전소자, RF magnetron sputtering, c 축 배향성, 표면 거칠기, 박막 밀도

---

\* 전남대학교 전기 및 반도체공학과

\*\* 한국교육기술대학교 기계공학과

\*\*\* 전남대학교 정보소재공학과

## I. 서 론

최근 정보통신산업의 급격한 발전으로 고주파 통신용 필터 등과 같은 압전 소자에 대한 관심이 높아지면서, 이러한 압전 소자들에 응용되는 재료들에 대한 많은 연구가 이루어지고 있다. 이러한 재료로는 ZnO, AlN, PZT, PLT 등이 있다. 이 중 ZnO는 육방정계 Wurzite 결정구조를 갖는 물질로서 결정 구조의 이방성, 비화학양론적 결합구조 (nonstoichiometric defect structure - n형 반도체), 가시광 영역에서 광학적 투광성, 높은 굴절계수, 큰 압전상수 및 높은 전기기계 결합계수 등의 다양한 특성을 가진 재료로, 최근까지 이러한 ZnO 박막의 압전 특성을 이용한 압전 박막 소자 제작에 관한 연구가 활발하게 이루어지고 있다.[1,2] 더우기 ZnO 박막은 우수한 발광 특성을 가지고 있어 LED (Light Emitting Diode) 나 LD (Laser Diode) 같은 광학소자로서의 응용가능성도 있다.[3]

ZnO 박막의 제작에는 스퍼터링법, CVD (Chemical Vapor Deposition), 이온 빔 증착법, Electron Cycotron Resonance 스퍼터링법, Laser ablation 법 등의 다양한 방법이 있으며<sup>[4-8]</sup>, 이 중에서 RF 마그네트론 스퍼터링법은 장치가 단순하며, 높은 증착률, 넓은 증착면적과 우수한 배향성을 갖는 양질의 박막을 얻을 수 있는 장점으로 ZnO 박막 성장에 널리 사용되고 있다. ZnO 박막이 압전 소자로 응용되기 위해서는 평탄한 표면과 우수한 c 축 배향성을 가져야 한다. 박막 표면이 거칠면 국부적인 속도변화에 따른 주파수 변화가 심하게 되므로 평탄한 표면의 ZnO 박막이 요구되며, 높은 기계결합계수를 갖기 위해선 우수한 c 축 배향성을 나타내야 한다.<sup>[9]</sup> 그러나 이러한 특성은 다양한 스퍼터링 조건 중에서 특히 기판온도에 크게 영향을 받으므로, ZnO 박막을 압전 소자에 응용하기 위해서는 기판 온도가 박막의 c 축 배향성과 박막의 표면 거칠기 및 밀도 등과 같은 재료 특성에 미치는 영향에 대한 연구가 매우 중요하다.

따라서 본 연구에서는 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하여 기판온도 변화에 따른 ZnO 박막을 제작하여, c 축 배향성 및 표면 거칠기와 밀도와 같은 ZnO 박막의 특성을 조사하였다.

## II. 실험방법

본 실험에서는 RF Magnetron 스퍼터링 법을 이용하여 ZnO 박막을 증착하였다. 실험에 사용된 기판은 실리콘 기판으로 박막성장의 기저면인 기판오염이 ZnO 박막 성장에 영향을 미칠 수 있으므로, 이물질을 제거하기 위해 초음파 세척기를 이용하여 아세톤(15분)/알코올(15분)/증류수(10분)/증류수(15분) 동안 세척하였다. 세척이 완료된 기판은 질소를 이용해 송풍 건조한 후, 80°C 오븐에서 30분동안 건조하여 사용하였다. 타겟은 화학량론적으로 소결된 ZnO (순도 99.999 % 2inch, Cerac) 를 이용하였으며, 조건을 변화시키면서 기초 실험을 한 후 양호한 조건인 Ar/O<sub>2</sub> 가스비 70/30, RF 전력 125 W, 스퍼터링 압력 8 mTorr, 기판-타겟의 거리 70 mm 에서 기판온도를 상온에서 400°C 까지 변화시켜가며 증착하였다. RF magnetron 스퍼터링 시스템의 개략도와 증착조건을 각각 그림 1 과 표 1 에 나타내었다. 증착 전 챔버 내의 불순물을 최대한 제거하기 위해 챔버의 진공도를 3×10<sup>-6</sup> Torr 이하로 유지한 후, MFC (Mass Flow Controller) 를 이용하여 반응성 가스인 Ar/O<sub>2</sub> 혼합가스를 챔버 내로 주입하였다. 기판온도는 기판 상부에 장착된 할로겐 램프를 사용하여 제어하였다. 타겟 표면에 형성된 불순물을 제거하고 플라즈마의 안정을 위해 shutter 를 닫은 상태에서 30분간 pre-sputtering 을 하였으며, 그 후 shutter 를 열어 ZnO 박막을 증착하였다.

기판온도에 따른 ZnO 박막의 구조적 특성을 분석하기 위해 X-ray diffractometer (PHILIPS PW 3020, Cuka) 을 이용하여  $\theta/2\theta$  방법으로 측정하여 결정성 및 우선 배향성을 조사하였다. ZnO 의 표면형상과 표면 거칠기를 조사하기 위해 각각 SEM (Hitachi S-4200) 과 AFM (Park Science, AP 2000L) 을 이용하였다.

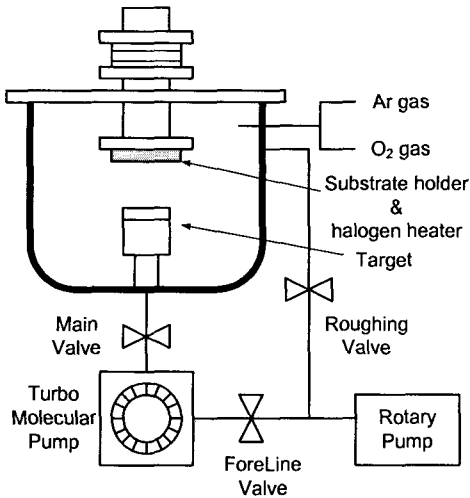


그림 1. RF magnetron sputter 장치 개략도  
Fig. 1. Schematic diagram of RF magnetron sputter system.

표 1. ZnO 박막의 sputtering 조건  
Table 1. Sputtering conditions of ZnO thin films.

Deposition parameter	Conditions
RF power (W)	125
Substrate temperature (°C)	RT ~ 400
Distance (target-substrate) (mm)	70 mm
Ar/O <sub>2</sub> gas ratio (%)	70/30
Working pressure (Torr)	$8 \times 10^{-3}$
Background pressure (Torr)	$3 \times 10^{-6}$

### III. 결과 및 고찰

그림 2에 기판온도 변화에 따른 XRD 패턴을 나타내었다. 상온에서 증착한 ZnO 박막은 (002) 피크보다 (100) 피크가 더 크게 나타났다. 이 후 온도 증가에 따라 (002) 우선 배향성이 점차 증가하는 것이 관찰되었다. 이러한 결과는 ZnO 박막의 배향성이 박막 증착시 기판 온도에 크게 의존한다는 기존의 연구 결과와 일치하는 것이다. 기판온도의 상승은 스퍼터링된 입자들의 표면 이동도를 향상시켜 (002) 결정면이 성장하도록 유도하며, 공공 (vacancy) 의 형성을 막아주고, 입자들과 기판의 접착력을 향상시켜 우선 배향성을 증가시킨다고 알려져 있다.

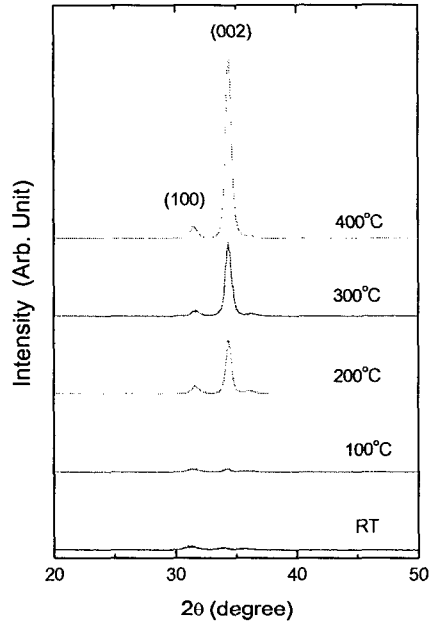


그림 2. 기판온도에 따른 ZnO 박막의 XRD 패턴  
Fig. 2. XRD patterns of ZnO thin films with various substrate temperatures.

기판온도에 대한 우선 배향성을 좀 더 자세히 관찰해 보기 위해 (100) 과 (002) 피크의 상대 강도비와 (002) 피크에 대한 반가폭 (FWHM) 을 조사하여 그림 3에 나타내었다. 그림 3에서 보듯이, 기판온도 300°C 에서 가장 큰 (002) 상대강도를 갖는 것을 알 수 있으며, 400°C 로 온도가 상승함에 따라 (002) 상대강도가 감소함을 알 수 있다. 이는 과도한 기판온도의 상승이 스퍼터링 되어 기판에 부착된 입자들의 증발을 유발하여 결정성을 저해시키기 때문인 것으로 생각된다. 또, ZnO 박막과 기판의 열팽창 계수의 차이로 인해, 기판의 냉각중 표면에 평행한 방향의 압력과 기판에 수직인 방향으로 발생하는 팽창력에 기인한 기계적 응력의 영향으로 c 축 배향성이 감소하는 것으로 생각된다. 기판온도에 따라 제작한 ZnO 박막의 (100) 과 (002) 피크의 상대 강도비 ( $I_{(002)}/I_{(100)}$ ) 는 상온에서 약 37%, 기판온도 300°C 에서 94% 로 약 57%의 상대강도 차이가 나는 것으로 미루어보아 기판온도에 의해 (002) 배향성이 지배를 받는다고 할 수 있다. 한편, 기판 온도가 증가함에 따라 반가폭 (FWHM) 이 좁아지는 경향을 나타냈

으며, 기판 온도 300°C 에서 0.571°로 가장 우수한 반가폭 (FWHM) 을 가짐을 알 수 있었다. 즉 기판 온도 300°C 에서 가장 결정성이 좋은 것으로 나타났다.

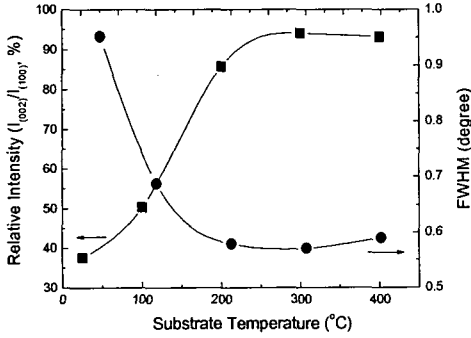


그림 3. 기판 온도에 따른 ZnO 박막의  $I_{(002)}/I_{(100)}$  상대 강도 및 반가폭

Fig. 3. Relative intensity of  $I_{(002)}/I_{(100)}$  and FWHM of ZnO thin films with various substrate temperatures.

ZnO 박막의 기판 온도에 따른 SEM 표면사진을 그림 4 에 나타내었다. 상온에서 200°C 까지는 결정화가 잘 이루어지지 않아 작은 입자들이 형성되어 있으며, 입자들 간의 경계면이 불확실하게 구성되어 있는 것이 관찰되었다. 반면 300°C 에서는 비교적 규칙적인 입자크기를 가지며, 치밀한 구조의 표면을 갖는 것으로 관찰되었다. 400°C 의 경우는 과도한 온도 상승으로 인해 입자 모양의 변형이 관찰되었으며, 표면에 주름이 형성되었음을 알 수 있었다. 이러한 주름은 표면 거칠기에 영향을 줄 것으로 생각된다. 이러한 결과를 토대로 증착되는 에너지의 크기가 증착되는 박막의 미세구조에 영향을 미치는 것으로 생각할 수 있다. 즉 열 에너지가 크거나 증착되는 입자의 수가 많으면, 표면에서 입자의 휘발을 유발시키거나 표면에 입자 덩어리를 형성시켜 표면 거칠기가 나빠지고, 표면입자의 변형을 유발시키는 것으로 생각된다.

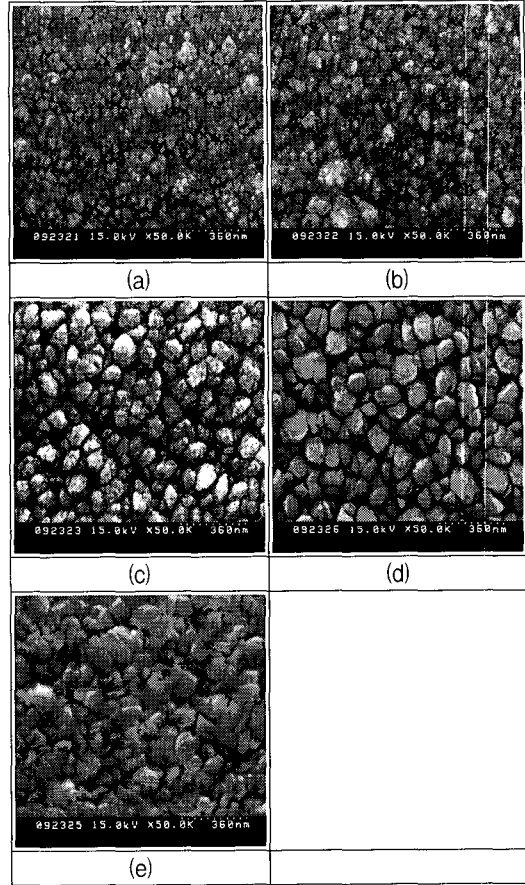


그림 4. 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 SEM 사진: (a) R.T., (b) 100°C, (c) 200°C, (d) 300°C, (e) 400°C.

Fig. 4. SEM micrographs of ZnO thin films with various substrate temperatures: (a) R.T., (b) 100°C, (c) 200°C, (d) 300°C, (e) 400°C.

그림 5 는 기판온도에 따라 제작한 ZnO 박막의 AFM 표면사진과 표면 거칠기를 분석하여 나타낸 것이다. 상온에서 증착한 경우 13.052 nm 정도의 표면 거칠기를 나타냈으나, 이후 온도가 증가함에 따라 300°C 에서 4.08 nm 로 가장 매끈한 표면을 갖는 것으로 관찰되었다. 이후 기판 온도 증가에 따라 표면 거칠기는 증가하여, 400°C 에서 8.165 nm 로 표면 거칠기가 다시 나빠지는 것이 관찰되었다. 이러한 원인은 과도한 열에너지 공급에 의한 영향으로 입자의 휘발에 의한 영향으로 생각할 수 있다.

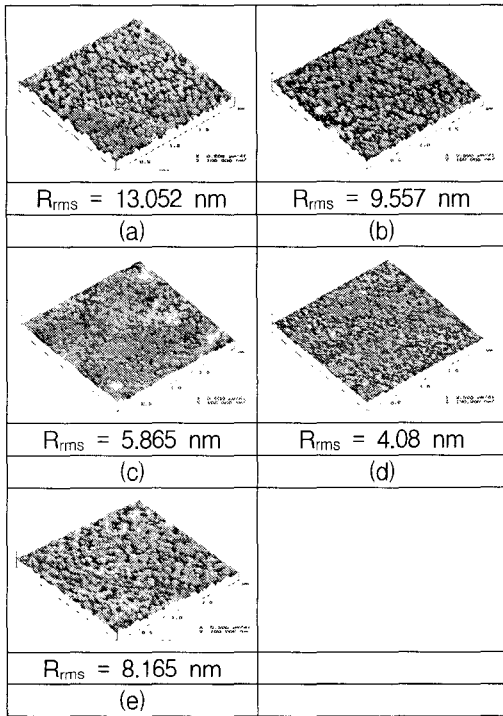


그림 5. 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 AFM 사진 및 표면 거칠기: (a) R.T., (b) 100°C, (c) 200°C, (d) 300°C, (e) 400°C.

Fig. 5. AFM images and surface roughnesses of ZnO thin films with various substrate temperatures: (a) R.T., (b) 100°C, (c) 200°C, (d) 300°C, (e) 400°C.

일반적으로 ZnO 박막의  $c/a$  는 약 1.602 정도의 값을 가지며 이상적인 ZnO 에서는 1.633 정도의 값을 갖는다고 알려져 있다. 이러한  $c/a$  비는 박막이 압전소자로 이용될 때, 큰 변형을 수반하여 우수한 압전 특성을 갖는 것으로 알려져 있다.<sup>[10]</sup> 따라서 본 연구에서는 기판온도 변화에 따라 제작한 ZnO 박막의 XRD 데이터로부터 Bragg 의 법칙을 이용해 격자상수  $c$  와  $a$  를 계산하여  $c/a$  비를 구해 그림 6 에 나타내었다. 그림 6 에서 보듯이, 기판 온도 300°C 에서  $c/a$  비가 1.6 으로 가장 크게 나타났으며, 이러한 결과를 통해 기판온도 300°C 에서 가장 큰 압전특성을 나타낼 것으로 예상할 수 있다.

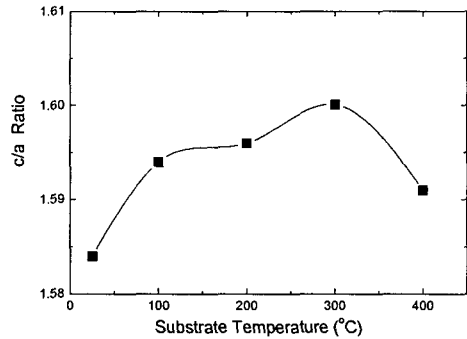


그림 6. 기판 온도에 따른 ZnO 박막의  $c/a$  비  
Fig. 6.  $c/a$  ratio of ZnO thin films with various substrate temperatures.

기판온도에 따라 제작된 ZnO 박막의 밀도를 평가하기 위해 식 (1) 을 이용하였다.

$$\rho = \frac{M}{6.02 \times 10^{23} \times V} \quad (1)$$

여기서,  $M$  은 ZnO unit cell 의 총 질량이고,  $6.02 \times 10^{23}$  은 아보가드로 수,  $V$  는 ZnO unit cell 의 면적이다. ZnO 박막의 unit cell 의 면적은 XRD 패턴으로부터 계산한  $c$  축과  $a$  축의 길이를 이용하여 계산하였으며,  $c$  축과  $a$  축의 길이는 Bragg 법칙과 식 (2) 를 이용해 계산하였다.<sup>[11]</sup>

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{4}{3} \times \left[ \frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right] + \frac{l^2}{c^2} \quad (2)$$

기판온도 변화에 따라 제작한 ZnO 박막의 밀도를 계산하여 그림 7 에 나타내었다. 온도 증가에 따라 밀도가 높은 치밀한 막이 만들어짐을 알 수 있으며, 기판온도 300°C 에서 밀도가 가장 높은 막이 만들어졌다. 이러한 결과는 기판온도 변화에 따른 SEM 표면 사진과의 비교를 통해서도 알 수 있다.

참고문헌

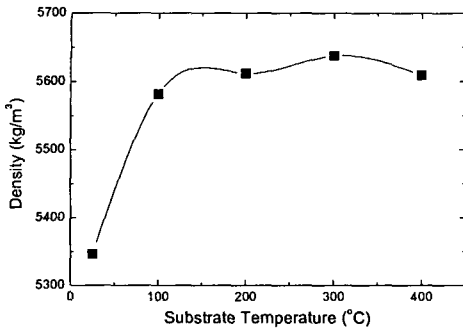


그림 7. 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 밀도  
Fig. 7. Density of ZnO thin films with various substrate temperatures.

IV. 결론

본 연구에서는 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하여 ZnO 박막 제작시 기판 온도가 ZnO 박막의 결정성, 우선배향성, 표면형상, 밀도 등에 미치는 영향을 조사하였다. 본 실험에서 제작된 ZnO 박막은 Ar/O<sub>2</sub> 가스비 70/30, 기판 온도 300°C, 인가전력 125 W, 챔버 압력 8 mTorr, 기판 타겟거리 70 mm 에서 (002) 피크의 상대 강도 비 ( $I_{(002)}/I_{(100)}$ ) 가 94% 로 가장 우수한 (002) 배향성을 보였으며, 반가폭 (FWHM) 은 0.571° 로 다른 조건에 비해 가장 우수한 c 축 배향성을 갖는 것으로 나타났다. 또한, ZnO 박막의 미세구조도 기판 온도가 300°C 일 때 제작된 박막의 SEM 사진을 통해 가장 균일한 입자를 가지고 있는 것을 확인할 수 있었다. AFM 을 이용하여 표면 거칠기를 관찰한 결과, 기판 온도 300°C 에서 4.08 nm 로 가장 우수한 표면 거칠기를 갖는 ZnO 박막이 만들어짐을 알 수 있었다. 또, 기판 온도에 따른 ZnO 박막의 밀도는 상온에서 300°C 로 기판 온도가 상승함에 따라 밀도가 높은 치밀한 박막이 만들어지다가, 400°C 이상의 온도에서 밀도가 다시 감소하였다.

이상의 결과로부터, ZnO 박막의 특성은 기판 온도에 많은 영향을 받는 것을 확인할 수 있었으며, 본 연구에서 제작한 ZnO 박막이 압전 소자에 응용될 수 있는 매우 유망한 재료임을 알 수 있었다.

[1] Frans C. M. Van De Pol, "Thin Film ZnO-properties and Applications", *Ceramic Bulletin*, **69**, pp.1559-1965 (1990).

[2] T. Mitsuyu, S. Ono and K. Wasa, "Deposition of Highly Oriented ZnO Films by Spray Pyrolysis and Their Structural, Optical and Electrical Characterization", *J. Appl. Phys.*, **44**, pp. 1061 (1984).

[3] D. Redfield, "Multiple-Pass Thin Film Silicon Solar Cell", *Appl. Phys. Lett.* **25**, pp. 647, 1974.

[4] S.B. Krupanidhi and M. Sayer, "Position and pressure effects in rf magnetron reactive sputter deposition of piezoelectric zinc oxide", *J. Appl. Phys.*, **56**, pp. 3308-3317 (1984).

[5] Sorab K. Gahndi, and Robert J. Field, "Highly oriented zinc oxide films grown by the oxidation of diethylzinc", *Appl. Phys. Lett.*, **37**, pp. 449 (1980).

[6] R. M. Malbon, D. J. Walsh, and D. K. Winslow, "Zinc-Oxide Film Microwave Acoustic Transducers", *Appl. Phys. Lett.*, **10**, pp. 9, 1967.

[7] M. Matsuoka and K. Ono, "Photochromism and anomalous crystallite orientation of ZnO films prepared by a sputtering-type electron cyclotron resonance microwave plasma", *Appl. Phys. Lett.*, **53**(15), pp. 1393 (1988).

[8] N. J. Ianno, L. McConville, N. Shaikh, S. Pittal and P. H. Aynder, "Characterization of pulsed laser deposited zinc oxide", *Thin Solid Films*, **220**, pp. 92 (1992).

[9] K. Ohji, O. Yamazaki, K. Wasa, and S. Hayakawa, "New sputtering system for manufacturing ZnO thin film SAW devices", *J. Vac. Sci. Technol.*, **15**(4), pp 1601-1604 (1978).

[10] H. S. Nalwa, Handbook of Thin Film Materials: Ferroelectric and Dielectric Thin Films, vol. 3, Academic Press. pp291-298 (2002).

[11] Su-Shia Lin et al., "The effects of r.f power and substrate temperature on the properties of ZnO films", *Surface and Technology*, **176**, pp. 173-181 (2004).

## 저자소개



**정 양 희(Yng-Hee Joung)**

1983년 2월 단국대 응용물리학과 졸업  
(공학사)

1985년 8월 인하대 응용물리학과 졸업  
(공학석사)

1993년 8월 인하대 전자재료공학과 졸업(공학박사)

1988-1995년 LG반도체 선임연구원

1995-현재 전남대학교 전기공학과 부교수

※ 관심분야: VLSI 공정 및 반도체물성

**권 오 경(Oh-Kyung Kwon)**

1984년 2월 한양대 재료공학과 졸업(공학사)

1986년 2월 한양대 재료공학과 졸업(공학석사)

현재 한국교육기술대학 기계공학과 박사과정



**강 성 준(Seong-Jun Kang)**

1989년 2월 인하대 응용물리학과 졸업  
(공학사)

1994년 8월 인하대 전자재료공학과 졸업  
(공학석사)

1999년 2월 인하대 전자재료공학과 졸업(공학박사)

현재 전남대학교 정보소재공학과 조교수

관심분야: VLSI materials, 강유전체박막