



〈연구논문〉

ISSN 1225-8024(Print)  
ISSN 2288-8403(Online)

한국표면공학회지  
J. Korean Inst. Surf. Eng.  
Vol.53, No.3, 2020.

<https://doi.org/10.5695/JKISE.2020.53.3.104>

## Au 층간박막 두께에 따른 ZnO 박막의 전기광학적 특성 변화

박윤제<sup>1</sup>, 최수현<sup>1</sup>, 김유성<sup>2</sup>, 차병철<sup>2</sup>, 공영민<sup>1</sup>, 김대일<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>울산대학교 첨단소재공학부, <sup>2</sup>한국생산기술연구원 첨단정형공정그룹

### Influence of Au Interlayer Thickness on the Opto-Electrical Properties of ZnO Thin Films

Yun-Je Park<sup>1</sup>, Su-Hyeon Choe<sup>1</sup>, Yu-Sung Kim<sup>2</sup>, Byung-Chul Cha<sup>2</sup>,  
Young-Min Gong<sup>1</sup>, and Daeil Kim<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44776, Republic of Korea

<sup>2</sup>Advanced Forming Processes R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology,  
Ulsan 44413, Republic of Korea

(Received 1 June, 2020 ; revised 25 June, 2020 ; accepted 28 June, 2020)

#### Abstract

ZnO single layer films (100 nm thick) and Au intermediated ZnO films (ZnO/Au/ZnO; ZAZ) were deposited on the glass substrate by RF and DC magnetron sputtering at room temperature and then the influence of the Au interlayer on the electrical and optical properties of the films were investigated. ZnO thin films show the visible transmittance of 90.3 % and sheet resistance of  $63.2 \times 10^8 \Omega/\square$ . In ZAZ films, as Au interlayer thickness increased from 6 to 10 nm, the sheet resistance decreased from  $58.3 \times 10^8$  to  $48.6 \Omega/\square$ , and the visible transmittance decreased from 84.2 to 73.9 %. From the observed results, it can be concluded that the intermediate Au thin film enhances the opto-electrical performance of ZnO films without intentional substrate heating.

*Keywords* : ZnO, Au, Sheet resistance, Visible transmittance, Optical band gap

## 1. 서 론

투명전도성 산화물(Transparent Conductive Oxide; TCO) 박막은 높은 가시광 투과율(Visible transmittance,  $\geq 80\%$ )과 낮은 면저항(Sheet resistance  $< 100 \Omega/\square$ ) 특성을 동시에 갖기 때문에 다양한 표시소자와 박막형 태양전지의 투명전극재로 사용되고 있다[1]. 최근 갈륨(Ga)이 첨가된 Zinc Oxide(GZO) 박막은

종래의 주석(Sn)이 첨가된 Indium Oxide(ITO) 박막의 대체 전극재료로 보고되어, 다양한 증착기술에 대한 연구가 진행되고 있다[2]. 그러나 실온조건에서 증착된 GZO 박막은 후속 열처리과정 없이 투명전극재로 사용하기에는 비교적 높은 비저항을 갖기 때문에 이를 개선하기 위해 다양한 열 표면개질기술 [3, 4]이 제시되었으나, 열에 취약한 폴리머(Polymer) 기판에 적용하기 어렵기 때문에 다양한 귀금속 박막을 중간층으로 사용한 TCO/metal/TCO 적층구조의 증착기술이 개발되었다[5].

본 연구에서는 ITO/Gold(Au) 적층박막 연구[6]에서 보고된 Au 박막의 전기광학적 특성 개선 효과를 ZnO/Au/ZnO (ZAZ) 적층박막에 적용하기 위하여,

\*Corresponding Author: Daeil Kim

School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan

Tel: +82-52-712-8066; Fax: +82-52-712-8045

E-mail: [dkim84@ulsan.ac.kr](mailto:dkim84@ulsan.ac.kr)

RF와 DC 마그네트론 스퍼터를 이용하여 ZnO 박막과 Au 박막을 증착하였고, Au 층간금속이 ZAZ 적층박막의 가시광 투과도와 전기적 특성에 미치는 영향을 고찰하였다.

### 2. 실험 방법

본 연구에서는 실온에서 ZnO (직경 3 Inch, 순도: 99.95%) 타겟과 Au(직경 3 Inch, 순도: 99.99%) 타겟이 장착된 RF와 DC 마그네트론 스퍼터를 이용하여 유리기판(3×3 cm<sup>2</sup>, Corning 1737)에 ZnO 단층박막과 ZnO/Au/ZnO 적층박막을 증착하였다. 유리기판은 이소프로판올, 증류수의 순서로 초음파 세척을 실시하고 질소가스로 건조하였으며, 타겟과 기판의 거리는 5 cm로 고정하였다. 자세한 증착조건은 Table 1에 나타내었다.

증착 후, 단차측정기(Dektak-150, Veeco)을 이용하여 박막의 두께와 증착율을 측정하였고, 기판과 박막의 가시광 투과율은 자외선-가시광선 분광기(380-780 nm, Cary 100 Cone, Varian)로 분석하였다. 유리기판의 가시광 투과율은 92.0% 이었다. 층간 Au 금속박막 적용에 따른 ZnO 박막의 결정성은 X선 회절분석기(X-ray diffraction XPERT-APD, Philips, Cu-Kα Radiation λ= 0.154 nm, 기초 과학지원연구원, KBSI 대구센터)로 분석하고, 표면조도(Root mean square, RMS 거칠기)는 원자간력현미경(Scan area 2×2 μm<sup>2</sup>, XE-100, Park system)으로 측정하였다. 박막의 면저항(Sheet resistance)은 Four point probe(HMS-3000, Ecopia)로 측정하였으며, 박막의 Figure of merit[7] 수치로 전기광학적 완성도(Opto-electrical performance)를 평가하였다.

Table 1. Experimental condition of ZnO and ZnO/Au/ZnO tri-layer deposition.

Base pressure (Torr)	7.0 × 10 <sup>-7</sup>	
Deposition pressure (Torr)	1.0 × 10 <sup>-3</sup>	
ZnO	RF Power (W/cm <sup>2</sup> )	2.5
Au	DC Power (W/cm <sup>2</sup> )	2.0
Ar gas flow rate (sccm)	ZnO : 20	Au : 10
Thickness (nm)		
ZnO single layer	100	
ZnO/Au/ZnO tri-layer	50/6/50, 50/8/50, 50/10/50,	
Deposition rate (nm/min)		
ZnO/Au	3.0 / 7.0	

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 ZnO 박막과 층간 Au 두께(6, 8, 10 nm)가 다른 ZAZ 다층박막의 X선 회절분석 결과이다. Au 박막의 두께가 증가할수록 Au(111) 면의 결정립 크기가 미세하게 증가하여 결정성이 향상됨을 알 수 있으며, ZnO (002) 방향의 결정성은 층간 Au 박막의 두께변화에 큰 영향을 받지 않았다.

Table 2에 아래의 Sqrerrer 관계식[8]으로 구한 ZnO (002)와 Au (111) 결정립의 크기(D)를 나타내었다.

$$D = 0.9 \lambda / B \cos \theta \tag{1}$$

수식에서 D는 결정립 크기, λ는 X선의 파장 0.154 nm, B는 반치폭 (Full width at half maximum, FWHM), θ는 Bragg 회절각도를 의미한다.

ZAZ 박막의 표면거칠기는 전기전도도와 가시광 투과율 등의 전기광학적 완성도에 영향을 미치므로 전극재료의 활용도를 평가할 수 있는 중요한 요소이다. Fig. 2에 원자간력현미경을 이용한 ZnO 박막과 ZAZ 적층박막의 표면형상과 RMS 거칠기를 나타내었다. ZnO 박막의 거칠기는 1.5 nm 이었으며, 6 nm 두께의 Au 층간 박막을 적용한 ZAZ 박막의 거칠기는 1.8 nm로서 미세하게 증가하였고, 8 nm 두께의 Au 층간 박막을 적용한 ZAZ 박막의 거칠기는 1.3 nm로 감소하였다. 이러한 거칠기 감소는 Fig. 1과 Table 2로 부터, 8 nm 두께의 Au 증착조건에서 단일층 성막(one layer)이 이뤄져서 평탄화가 진행되었으며, Au 박막의 두께 10 nm 조건에서 다시 증가된 거칠기(1.7nm)는 Au 박막의 결정성 향상으로 사료된다.

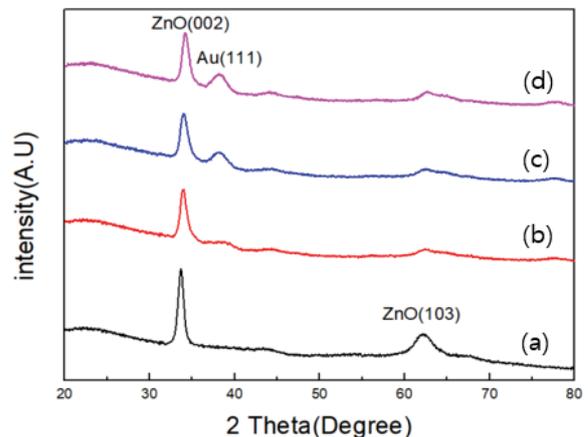


Fig. 1. XRD pattern of the ZnO/Au/ZnO films. (a) ZnO 100 nm, (b) ZnO 50 nm/Au 6 nm/ZnO 50 nm, (c) ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm, (d) ZnO 50 nm/Au 10 nm/ZnO 50 nm.

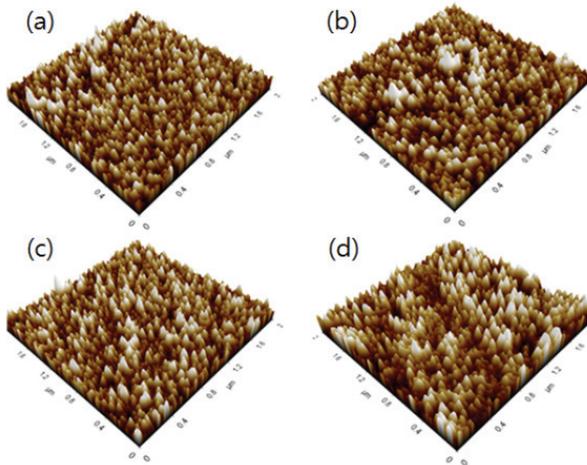


Fig. 2. Surface morphology and RMS roughness of the ZnO and ZnO/Au/ZnO films. (a) ZnO 100 nm; 1.5 nm, (b) ZnO 50 nm/Au 6 nm/ZnO 50 nm; 1.8 nm, (c) ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm; 1.3 nm, (d) ZnO 50 nm/Au 10 nm/ZnO 50 nm; 1.7 nm.

Table 2. Grain size of ZnO single layer and ZnO/Au/ZnO tri-layer films.

Thickness (nm)	Orientation	2 Theta (Deg.)	FWHM (Deg.)	Grain size (nm)
ZnO 100	ZnO (002)	33.80	0.71	11.6
50/6/50	ZnO (002)	33.96	0.73	11.4
50/8/50		34.16	0.72	11.5
50/10/50		34.16	0.72	11.5
50/6/50		-	-	-
50/8/50	Au (111)	38.18	1.72	4.8
50/10/50		38.24	1.69	5.0

Fig. 3에 ZnO 박막과 ZAZ 다층박막의 가시광 투과도를 나타내었다. ZnO 박막의 평균 가시광 투과도는 90.3%이고 ZAZ 박막의 평균 가시광 투과도는 층간 Au 막의 두께에 따라서 84.2부터 73.9% 까지 감소하였다. 특히 ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm 박막에서 비교적 높은 가시광 투과도(79.6%)가 측정된 것은 Au 층간박막의 거울효과(Mirror effect)와 상부 ZnO 박막의 반사방지 효과[9]에 기인한 것으로 사료된다.

Table 3에 ZnO와 ZAZ 박막의 Figure of merit (FOM) 수치 변화를 나타내었다. FOM 수치는 투명 전도성 소재의 전기적, 광학적 완성도를 비교할 수 있는 기준으로서, 가시광 투과율과 전기전도도는 서로 반비례 관계를 가지며 관계식(2)는 아래와 같다.

$$\text{Figure of merit} = T^{10} / R_{sh} \quad (2)$$

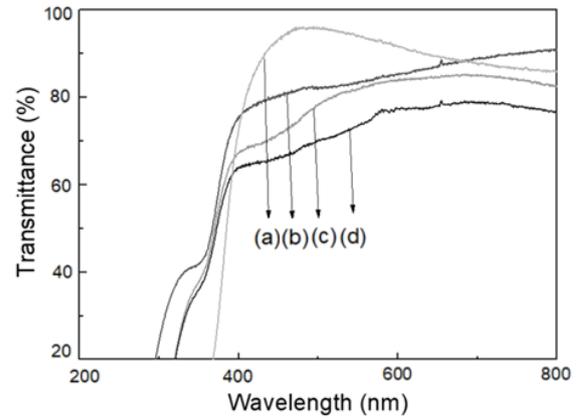


Fig. 3. Optical transmittance of the ZnO and ZnO/Au/ZnO films. (a) ZnO 100 nm, (a) ZnO 50 nm/Au 6 nm/ZnO 50 nm, (b) ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm, (c) ZnO 50 nm/Au 10 nm/ZnO 50 nm.

Table 3. Figure of merit (FOM) of ZnO single layer and ZnO/Au/ZnO (ZAZ) tri-layer films.

Thickness		Sheet resistance [ $\Omega/\square$ ]	Transmittance [%]	FOM [ $\Omega^{-1}$ ]
ZnO	100	$63.2 \times 10^8$	90.3	$5.7 \times 10^{-11}$
ZAZ	50/6/50	$58.3 \times 10^8$	84.2	$3.0 \times 10^{-11}$
	50/8/50	74.7	79.6	$1.3 \times 10^{-3}$
	50/10/50	48.6	73.9	$1.0 \times 10^{-3}$

위 관계식에서 T는 가시광 투과율이며  $R_{sh}$ 는 박막의 면저항을 의미한다.

본 연구에서 ZnO 단층박막의 FOM 수치는  $5.7 \times 10^{-11} \Omega^{-1}$ , ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm 박막은 층간 Au층의 단일층 성막 효과와 전하농도의 증가[10]로 인하여 면저항의 급격한 감소를 보이며, ZnO 단층박막 보다 높은  $1.3 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$ 의 FOM 수치를 보였다.

ZnO 박막 보다 8 nm 두께의 Au 박막이 삽입된 ZAZ 박막이 상대적으로 높은 FOM 수치를 보임으로써, 적정 두께의 Au 층간 막을 적용한 ZAZ 적층 박막이 전기광학적 특성 제고에 효과적인 구조임을 알 수 있었다.

Fig. 4에 ZnO와 ZAZ 적층박막의 광학적 밴드-갭(Optical band-gap)과 흡수계수 $(\alpha h\nu)^2$ 의 관계를 나타내었다. 광학적 밴드-갭을 구하는데 필요한 박막의 흡수계수는 아래 관계식으로 나타낼 수 있다[10].

$$\alpha = \ln(1/T) / d \quad (3)$$

관계식(3)에서  $\alpha$ 는 흡수계수, d는 박막의 두께, T는

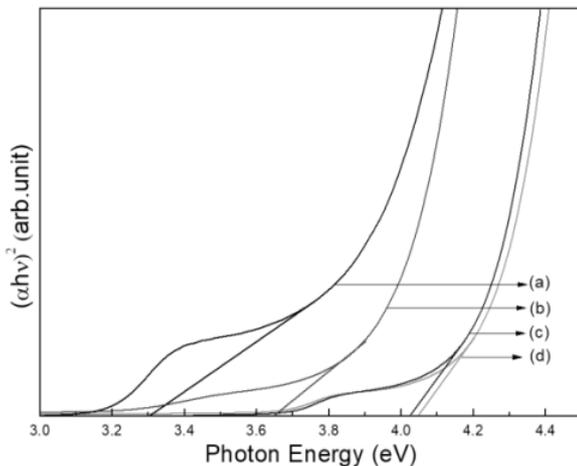


Fig. 4. Optical band gap of the ZnO and ZnO/Au/ZnO films. (a) ZnO 100 nm; 3.31 eV, (b) ZnO 50 nm/Au 6 nm/ZnO 50 nm; 3.66 eV, (c) ZnO 50 nm/Au 8 nm/ZnO 50 nm; 4.03 eV, (d) ZnO 50 nm/Au 10 nm/ZnO 50 nm; 4.05 eV.

평균 가시광 투과율을 뜻하며, 흡수계수와 광학적 밴드-갭의 관계는 다음과 같다[11].

$$(\alpha h\nu)^2 = h\nu - E_g \quad (4)$$

관계식(4)에서,  $h$ 는 Planck 상수,  $\nu$ 는 광자(Photon)의 진동수,  $E_g$ 는 광학적 밴드-갭을 의미한다.

Fig. 4에서 ZnO 박막의 광학적 밴드-갭은 3.31 eV 이었고, ZAZ 다층박막의 광학적 밴드-갭은 Au 층간 박막의 두께 (6, 8, 10 nm) 증가에 비례하며 3.66, 4.03, 4.05 eV 까지 증가하였다. Fig. 4의 광학적 밴드-갭 증가는 앞서 보고된 Y. Song의 ZTO/Ag/ZTO 박막의 광학적 밴드-갭 측정 연구[12]와 유사한 결과로서, Au 층간금속 두께 증가에 따른 박막의 전하밀도 증가 현상으로 사료된다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 RF와 DC 마그네트론 스퍼터를 이용하여 유리기판에 ZnO/Au/ZnO 적층박막을 증착하고, Au 층간금속 두께(6, 8, 10 nm)에 따른 박막의 전기적, 광학적 물성 변화를 고찰하였다. 8 nm 두께의 Au 층간 금속층에서 Au(111) 회절피크가 검출되어 성막화가 진행된 것을 알 수 있었으며, 박막의 평탄화로 인하여 1.3 nm의 RMS 거칠기가 측정되었다. 또한 층간 Au 금속의 두께에 반비례하여 면저항이 감소하였으며 ZnO/Au/ZnO 적층박막이 ZnO 단층박막보다 상대적으로 높은 전기광학적 완성도 (Figure of merit) 결과를 보임으로써, 경량성과 유연

성을 갖는 플렉시블 디스플레이의 투명전극재로 유용함을 알 수 있었다.

## References

- [1] A. H. Ali, A. S. A. Bakar, Z. Hassan, Improved optoelectronics properties of ITO-based transparent conductive electrodes with the insertion of Ag/Ni under-layer, *Appl. Surf. Sci.*, 3151 (2014) 387-391.
- [2] D. Kim, Improved electrical and optical properties of GZO films with a thin TiO<sub>2</sub> buffer layer deposited by RF magnetron sputtering, *Ceram. Inter.*, 40 (2014) 1457-1460.
- [3] Y. S. Kim, S. B. Heo, H. M. Lee, Y. J. Lee, D. Kim, Effects of electron irradiation on the properties of GZO films deposited with RF magnetron sputtering, *Appl. Surf. Sci.*, 258 (2012) 3903-3906.
- [4] G. H. Jo, J. H. Koh, Laser annealing effects on Ga dopants for ZnO thin films for transparent conducting oxide applications, *Ceram. Inter.*, 45 (2019) 6190-6197.
- [5] C. H. Hong, Y. J. Jo, H. A. Kim, I. H. Lee, J. S. Kwak, Effect of electron beam irradiation on the electrical and optical properties of ITO/Ag/ITO and IZO/Ag/IZO films, *Thin Solid Films*, 519 (2011) 6829-6833.
- [6] Y. S. Kim, J. H. Park, D. Kim, Influence of Au underlayer thickness on the electro-optical properties of ITO/Au layered films deposited by magnetron sputtering on unheated polycarbonate substrates, *Vacuum*, 82 (2008) 574-578.
- [7] G. Haacke, *J. Appl. Phys.*, New figure of merit for transparent conductors, 47 (1976) 4086-4089.
- [8] T. K. Gong, S. B. Heo, D. Kim, Effect of post-deposition annealing on the structural, optical and electrical properties of ZTO/Ag/ZTO trilayered films, *Ceram. Inter.*, 42 (2016) 12341-12344.
- [9] Y. J. Lee, D. S. Ruby, D. W. Peters, B. B. McKenzie, J. W. P. Hsu, ZnO Nanostructures as Efficient Antireflection Layers in Solar Cells *Nano Letters*, 8 (2008) 1501-1505.
- [10] Y. Kim, J. Park, D. Choi, D. Kim, ITO/Au/ITO multilayer thin films for transparent conducting electrode applications, *Appl. Surf. Sci.*, 254

- (2007) 1524-1527.
- [11] S. Peng, T. Yao, Y. Yang, K. Zhang, J. Jiang, K. Jin, G. Li, X. Cao, G. Xu, Y. Wang, Influences of the RF power ratio on the optical and electrical properties of GZO thin films by DC coupled RF magnetron sputtering at room temperature, *Physica B*, 503 (2016) 111-116.
- [12] N. Kumar, B. Joshi, K. Asokan, Influence of deposition rate on the structural, optical and electrical properties of electron beam evaporated SnO<sub>2</sub> thin films for transparent conducting electrode applications, *J. Semicond.*, 39 (2018) 083002(1-7).
- [13] Y. H. Song, T. Y. Eom, S. B. Heo, D. Kim, Effect of Post-deposition Rapid Thermal Annealing on the Electrical and Optical Properties of ZTO/Ag/ZTO Tri-layer Thin Films, *J. Korean. Soc. Heat Treat.*, 30 (2017) 151-155.