

ZnO:Al 박막의 전기적, 광학적 특성에 미치는 바이어스 전압효과

Effect of Bias Voltage of Influenced on a Property of Electrical and Optical of ZnO:Al

나영일¹, 이재형^{1,a}, 임동건², 양계준²

(Young-il Na¹, Jae-Hyeong Lee^{1,a}, Dong-Gun Lim², and Kea-Joon Yang²)

Abstract

Al doped Zinc Oxide, which is widely used as a transparent conductor in opto-electronic devices. In this paper, we find that the lateral variations of the parameters of the ZnO:Al films prepared by the rf magnetron sputtering can be reduced to acceptable levels by optimising the deposition parameters. The effect of bias voltage on the electrical, optical and morphological properties were investigated experimentally. we investigated sample properties of Bias Voltage change in 0 to 50 V.

Key Words : RF magnetron sputtering, Transmittance, Hall effect, Bias voltage

1. 서론

ZnO는 II-VI족의 산화물 반도체로서 상온에서 에너지 띠 간격이 약 3.37 eV의 직접 천이형 반도체이며, LED(light emitting diode)[1,2], LD(Laser diode)[3], 음향변조기[4]등에 응용성이 기대되고 있어 주목되고 있는 물질이다[5]. 여기에 III족 원소인 Al을 첨가하면 Al이 donor역할을 하여 더 낮은 비저항과 가시광 영역에서 높은 투명성을 얻을 수 있다[6]. ZnO 결정의 성장방법은 pulsed laser deposition, 고주파 마크네트론 스퍼터링(rf-magnetron sputtering), spray, thermal chemical vapor deposition, low-pressure metal organic chemical vapor deposition technique (LP-CVD), molecular-beam epitaxy(MBE) 등이 있다. 이 방법들 가운데 RF-magnetron sputtering은 가장 많이 사용되는

방법으로 대량생산을 할 수 있다는 장점을 가지고 있다. 또한 이들 분야에서 대부분 기판으로 사용되는 유리의 경우 파손의 우려, 유연성, 기판 두께 등 여러 가지 조건의 제한이 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 근래에는 poly carbonate(PC), polyethylene terephthalate(PET), poly-propylene (PP), acryl 등과 같은 투명 플라스틱 기판 위에 ZnO:Al 박막을 증착하는 기술이 연구되어지고 있다. 그러나 플라스틱 기판은 열에 민감하기 때문에 glass 기판과는 달리 sputter power, 기판온도 등에 제약을 받게 된다는 단점이 있다. 본 논문에서는 기판온도를 가하지 않은 상태에서 Sputter power와 pressure를 각각 150 W, 2 mTorr로 고정시킨 후에 기판에 바이어스 전압을 변화시켜 ZnO:Al 박막의 구조적, 전기적, 광학적 특성을 조사하였다.

1. 군산대학교 전자정보공학부

(전북 군산시 미룡동 산68)

2. 총주대학교 전자공학과

a. Corresponding Author : jhyi@kusan.ac.kr

접수일자 : 2004. 11. 11

1차 심사 : 2004. 12. 6

2차 심사 : 2005. 3. 10

3차 심사 : 2005. 3. 28

4차 심사 : 2005. 5. 6

심사완료 : 2005. 5. 10

2. 실험 조건

두 플라스틱 기판(PC, PET)과 비교를 위해 유리(Corning 7059)를 사용하여 ZnO:Al 박막을 증착시켰다. 유리 기판의 경우 아세톤, 메탄올 순으로 15분간 초음파 세척후, 탈 이온수로 기판 표면을 씻어내고 질소 gun으로 물기를 제거하여 사용하였다. 두 플라스틱 기판은 세척액과의 화학적 반응을

표 1. ZnO:Al 박막의 제조조건.

Table 1. ZnO:Al thin films of fabricated conditions.

Deposition parameter	Condition
Sputtering method	R.F. Magnetron
Target	ZnO:Al (3 inch)
Target-Substrate distance	70 mm
Pressure & Sputter power	2 mTorr & 150 W
DC Bias Voltage	0~50 V
Work Time	60 min
Substrate temperature	room temperature

방지하기 위해 메탄올과 탈 이온수를 사용하여 15분간 초음파 세척하고 유리 기판과 동일한 방법으로 세척액을 씻어내고 물기를 제거하였다. ZnO:Al 박막 제조를 위해 RF magnetron sputter 장비를 사용하였다. 여기서 사용된 타겟은 순도 99.99 %의 3 inch Al이 2 wt 함유된 ZnO 세라믹 타겟을 사용하였다. 시편 제조를 위해 chamber안의 압력을 10^{-6} Torr 이하로 배기한 후에 Ar 가스를 주입하여 원하는 압력을 유지시키고 기판에 바이어스 전압을 가하여 시편을 제조하였다. 이 논문에서는 플라스틱 기판의 단점인 열에 의한 기판의 변형을 방지하기 위해 기판은 가열하지 않았다. 표 1은 ZnO:Al 박막 제조에 사용된 제조공정 조건을 나타내었다. 또한 시편의 구조적 특성을 관찰하기 위해 X-ray diffractometer(XRD)의 장비를 이용하여 각각의 특성을 분석하였다. 제조된 시편의 두께를 측정하기 위해 α -step을 사용하여 조사하였으며, 시편들의 비저항은 4-point probe와 Hall-effect 장비를 이용하여 측정하였으며, 광 투과도, 반사율 등의 광 특성을 UV VIS를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

박막의 증착률은 막의 두께를 증착한 시간으로 정의되며, 박막 두께 조절은 특히 정밀한 다층의 코팅의 경우 매우 중요하게 된다[7]. 그림 1은 압력이 2 mTorr이고, 스퍼터 전력이 150 W일 때 바이어스 전압이 가하지 않은 상태와 20 V에서 50 V까지 가변함에 따라 변화하는 ZnO:Al 박막의 증착률을 나타낸 것이다. 그림에서 보는 것과 같이 바이어스 전압이 30 V까지 증가함에 따라 ZnO:Al

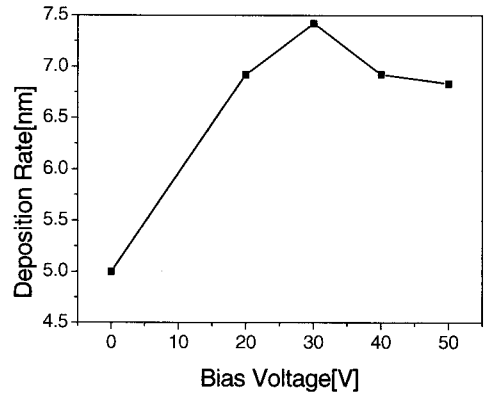


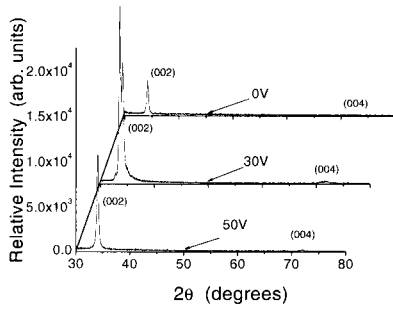
그림 1. 바이어스 전압에 따른 ZnO:Al 박막의 증착률.

Fig. 1. DC bias voltage with different ZnO:Al of deposition rate.

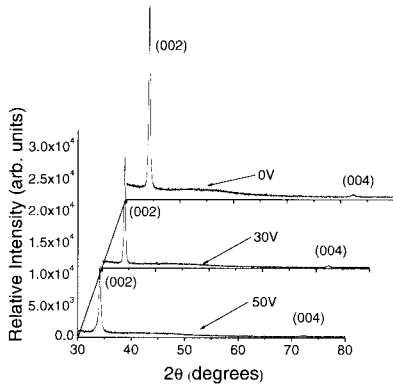
박막의 증착률은 선형적으로 증가하지만 그 이후로 증가하는 전압은 증착률을 떨어뜨리는 경향을 나타내었다.

이것은 바이어스 전압이 30 V까지는 증가함에 따라 타겟에 전달되는 에너지가 바이어스 전압이 끼치는 영향이 상대적으로 적어서 증착률이 증가하지만, 그 이상이 되는 경우에는 오히려 입자를 기판에서 역으로 스퍼터링을 하기 때문에 증착률은 감소하게 된다. 플라스틱 기판의 경우 Glass 기판과 비슷한 증착률을 보여주었다. 하지만 실험을 하면서 40 V 이상이 되면서부터 플라스틱 기판의 모서리 부분이 타들어가는 것을 관찰할 수 있었다. 그에 따라 기판온도의 상승이라는 역효과에 의해 플라스틱 기판의 변형이 발생할 수 있으므로 최적 값을 찾느냐가 매우 중요하다.

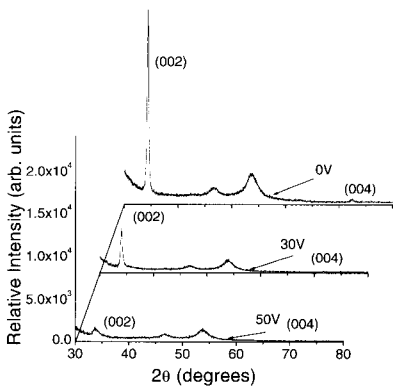
바이어스 전압에 따른 ZnO:Al 박막의 결정구조를 알아보기 위해 X-ray 회절검사를 하였다. 그림 2는 바이어스 전압을 달리하여 유리 및 PC, PET 기판 상에 제조한 ZnO:Al 박막의 XRD 회절 패턴을 나타낸 것이다. 기판 종류 및 바이어스 전압에 관계없이 $2\theta=34^\circ$ 및 72° 부근에서 회절 peak이 관찰되는데, 이들은 hexagonal phase의 (002), (004) 면에 대응하는 peak이다. 한편 바이어스 전압이 30 V에서는 유리 및 PC 기판 모두 (002) 면에 해당하는 peak 세기가 다른 조건보다 우세하였으나 그 이후가 되면서 부터는 peak이 작아지는 것을 관찰할 수 있었다. 이는 바이어스 전압이 30 V일 때, 가장 우수한 c-축 배향성을 지니고 있다



(a)



(b)



(c)

그림 2. 바이어스 전압에 따른 ZnO:Al 박막의 XRD 패턴 (a) 유리 기판, (b) PC 기판, (c) PET 기판.

Fig. 2. DC bias voltage with different ZnO:Al of XRD pattern (a) glass substrate, (b) PC substrate, (C) PET substrate.

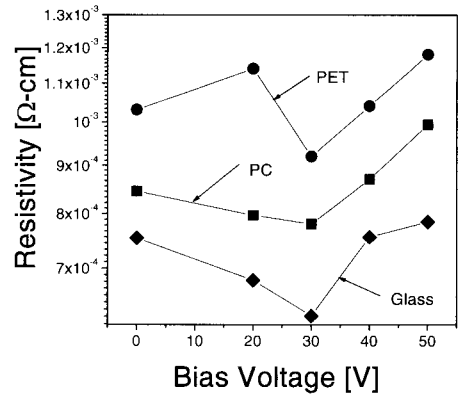


그림 3. 바이어스 전압에 따른 ZnO:Al 박막의 저항률.

Fig. 3. DC bias voltage with different ZnO:Al of resistivity.

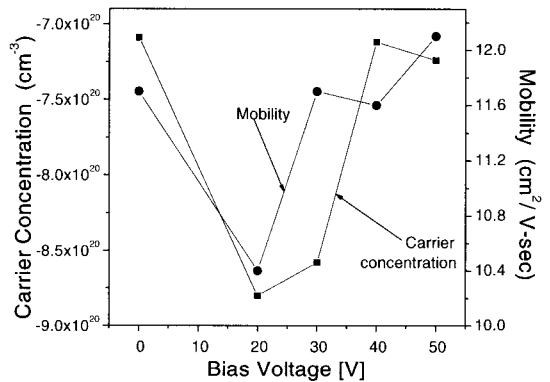
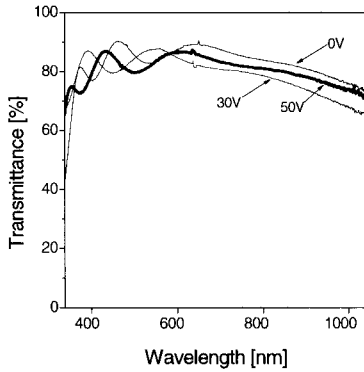


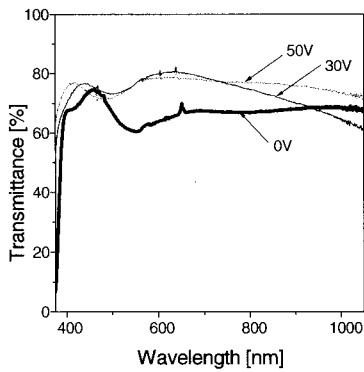
그림 4. 유리기판에 증착한 바이어스 전압에 따른 ZnO:Al의 mobility 및 carrier 농도.

Fig. 4. DC bias voltage with different ZnO:Al of mobility, carrier concentrations on glass substrates.

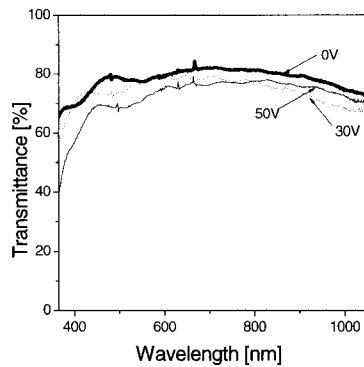
는 것을 의미하며 더불어 막의 성질이 가장 우수하다는 것을 알 수 있다. 하지만 폴리머 계열의 기판들은 바이어스 전압이 가해질수록 peak의 세기가 작아지는 것을 관찰할 수 있었는데, 이는 기판에 가해지는 바이어스 전압이 증가할수록 c-축 배향성이 나빠지는 것을 확인할 수 있었다.



(a)



(b)



(c)

그림 5. 바이어스 전압에 따른 ZnO:Al 박막의 광 투과율 (a) 유리 기판, (b) PC 기판, (c) PET 기판.

Fig. 5. DC bias voltage with different ZnO:Al films of optical transmittance (a) Glass substrate, (b) PC substrate, (c) PET substrate.

그림 3은 스퍼터 전력에 따른 ZnO:Al 박막의 저항률 변화를 나타낸 것이다. 저항률은 바이어스 전압이 30 V까지 증가함에 따라 감소하지만 40 V 이후부터는 저항률이 증가함을 알 수 있다. 또한 전체 바이어스 전압 범위에서 유리 기판이 다른 플라스틱 기판에 비해 저항률이 낮은 것을 관찰할 수 있었는데, 이는 스퍼터의 전력과 바이어스 전압이 올라감에 따라 온도도 같이 상승하여 두 플라스틱 기판에 영향을 주었으리라 사료된다.

캐리어 농도 및 이동도를 조사하기 위해 Hall-effect 장비를 이용하여 측정하였다. 그림 4는 유리 기판에 바이어스 전압을 가하여 바이어스 전압이 변화함에 따른 ZnO:Al의 mobility 및 carrier 농도를 나타내었다. 바이어스 전압이 30 V까지 증가할 때, 이동도는 증가하는 것을 알 수 있다. 이동도가 증가하는 것은 비저항이 작아지는 것을 의미한다. 하지만 40 V 이상이 되면서 이동도가 다시 감소하는데, 이는 증착률과도 관련이 있다.

또한 캐리어의 농도가 바이어스가 증가할수록 이에 비례하여 증가하는데, 이는 비저항이 캐리어 농도가 높아질수록 떨어지는 것을 알 수가 있다.

그림 5는 유리, PC 그리고 PET기판에 증착한 ZnO:Al 박막의 광 투과율을 바이어스 전압의 변화에 따라 나타낸 것이다. 가시광 영역에서 유리, PC 및 PET기판 모두 바이어스 전압이 30 V까지는 투과율이 감소하였지만 그 이상이 되면서 투과율이 다시 증가하는 것을 관찰할 수 있었는데, 이는 증착률이 낮아질수록 투과율은 증가하지만 다른 특성들이 저하된다.

그림 6은 서로 다른 바이어스 전압에서 증착한 ZnO:Al 박막의 반사율을 나타내고 있다. 가시광 영역에서는 유리 기판은 20 %, PC 기판은 16 %, PET 기판은 12 %이하의 반사율을 보여주었으며, 바이어스 전압이 30 V일 때 세 기판 모두 가장 낮은 반사율을 보여주고 있다. 그림 4에서 보는 것과 같이 세 기판 모두 바이어스 전압이 30 V 까지 증가할 때까지는 낮은 비저항을 보이지만 바이어스 전압이 그 이상 증가할 경우 30 V이하의 전압에서 보다 높은 비저항 즉, 낮은 캐리어 농도와 이동도의 값을 가진다. 결과적으로 바이어스 전압이 40 V 이상이 되면 기판에서 역 스퍼터링이 발생하여 반사율이 증가하며, 반사율이 증가하는 것은 박막의 비저항이 감소하기 때문이라는 것을 알 수 있다.

4. 결론

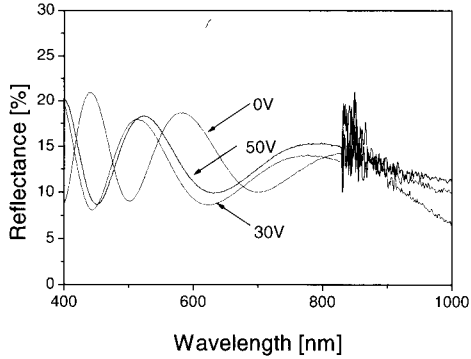
Glass 및 플라스틱 기판 상의 RF magnetron sputter 법을 이용, ZnO:Al 박막을 제조하여 증착 조건에 대해 박막의 전기적, 구조적, 광학적 특성을 조사한 결과 X-ray 회절검사에서 바이어스 전압이 30 V일 때 peak의 세기가 다른 조건에서 보다 가장 컸으며 이는 c-축 배향성이 우수하다는 것을 보여준다. ZnO:Al 박막의 증착률은 바이어스 전압을 가하지 않은 상태에서 바이어스를 서서히 가해주었을 때 30 V까지는 선형적으로 증가하다가 다시 감소하는 것을 알 수 있었다. 이는 30 V까지는 바이어스 전압이 스퍼터 전력의 영향을 받지 않지만, 그 이상이 되면 역으로 스퍼터링이 되어 증착률을 감소시키는 결과를 보여주었다. 저항률의 경우 유리 기판이나 플라스틱 기판에 관계없이 증착률과 비슷한 패턴의 결과를 관찰할 수 있었고, 바이어스 전압이 30 V일 때의 저항률은 유리의 경우 $6.23 \times 10^{-4} \Omega cm$ 의 비저항을 나타내었다. 광 투과율의 경우 유리 기판과 PET 기판은 30 V일 때, 투과율이 저하되었으나 40 V부터 투과율이 다시 높아졌으며, PC 기판은 바이어스 전압이 높아질수록 투과율이 향상되었으며, PET 기판은 바이어스 전압이 증가할수록 투과율이 저하되었다. 반사율은 세 기판 모두 30 V에서 가장 낮은 반사율을 보였다. 따라서 바이어스 전압이 30 V일 때 가장 우수한 성질을 보여주었다.

감사의 글

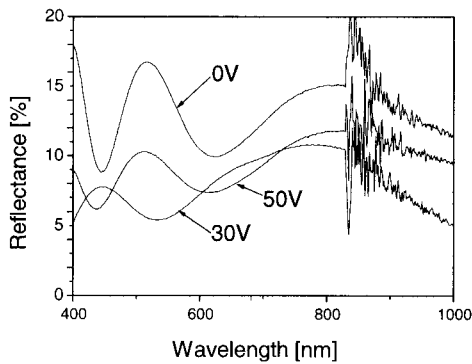
본 연구는 산업자원부의 지원에 의하여 기초 전력 연구원(R-2004-B-119-01)주관으로 수행된 과제임.

참고 문헌

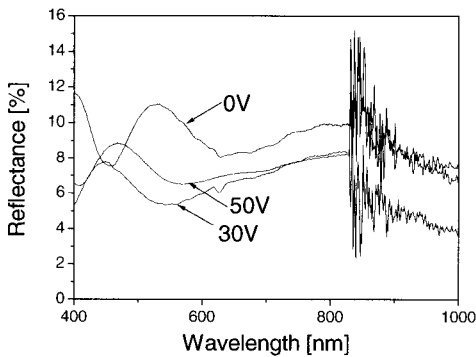
- [1] L. Roa, J. C. Chervin, A. Chevy, M. Davila, P. grima, and J. Gonzalez, Phys. Stat., Vol. 198, p. 99, 1996.
- [2] N. Yamamoto, JPrS. J. of Applied Phy., Vol. 15, p. 1909, 1976.
- [3] V. A. Savchuk, B. V. Lorzoun, and D. I. Zhigunov, "Growth and cathodoluminescence study of CuAlSe₂ single crystals", J. Crys. Growth, Vol. 158, Iss. 3, p. 385, 1996.



(a)



(b)



(c)

그림 6. 바이어스 전압변화에 따른 ZnO:Al 박막의 반사율 (a) 유리기판, (b) PC 기판, (c) PET 기판.

Fig. 6. DC bias voltage with different ZnO:Al films of reflectance (a) Glass substrate, (b) PC substrate, (c) PET substrate.

- [4] A. M. Andriesh, N. N. Syrbu, M. S. Iovu, and V. E Tazlavan, *Phys. Status Solidi, b*, Vol. 187, p. 83, 1995.
- [5] K. J. Hong, "Growth and effect of thermal annealing for ZnO thin film by pulsed laser deposition", *J. of KIEEME(in Korean)*, Vol. 17, No. 5, p. 467, 2004.
- [6] W.-F. Wu and B.-S. Chiou, "Mechanical properties of r.f. magnetron sputtered indium tin oxide films", *Thin Solid Films*, Vol. 293, Iss. 1-2, p. 244, 1997.
- [7] T. Tsuji and M. Hirohashi, "Influence of oxygen partial pressure on transparency and conductivity of RF sputtered Al-doped ZnO thin films", *Applied Surface Science*, Vol. 157, Iss. 1-2, p. 47, 2000.