

SiInZnO/Ag/SiInZnO 다층박막의 Ag 형성 메커니즘에 따른 광학적 특성 변화

이영선¹, 이상렬^{2,a}

¹ 청주대학교 전자공학과

² 청주대학교 반도체공학과

Effect of Ag Formation Mechanism on the Change of Optical Properties of SiInZnO/Ag/SiInZnO Multilayer Thin Films

Young Seon Lee¹ and Sang Yeol Lee^{2,a}

¹ Electronic Engineering, Cheongju University, Cheongju 360-764, Korea

² Department of Semiconductor Engineering, Cheongju University, Cheongju 360-764, Korea

(Received April 1, 2013; Revised April 23, 2013; Accepted April 24, 2013)

Abstract: By inserting a very thin metal layer of Ag between two outer oxide layers of amorphous silicon indium zinc oxide (SIZO), we fabricated a highly transparent SIZO/Ag/SIZO multilayer on a glass substrate. In order to find the optimized thickness of Ag layers, we investigated the variation of optical properties depending on Ag thickness. It was found that the transition of Ag layer from island formation to a continuous film occurred at a critical thickness. Continuity of the Ag film is very important for optical properties in SIZO/Ag/SIZO multilayer. With about 15 nm thick Ag layer, the multilayer showed a high optical transmittance of 80% at 550 nm and low emissivity in IR.

Keywords: Multilayer, Thin film, Transparent conductive oxide, Low emissivity glass, SIZO

1. 서론

투명 전도성 산화물 (transparent conductive oxide, TCO)은 LCD, OLED와 같은 평판 디스플레이 (FPD) 및 태양전지 (solar cells)를 비롯한 광전자소자, 터치 패널, 로이 유리 (low-emissivity) 등에 널리 사용되고 있는 물질이다. 다양한 분야에서 사용되는 투명

전도막은 기본적으로 가시광 영역에서의 높은 투과율과 낮은 저항을 갖추어야 한다. 투명 전도성 재료로서 사용되는 산화아연을 상온에서 단일막으로 제작할 경우 높은 저항을 갖고 있다. 산화인듐주석 같은 경우에는 우수한 투과도와 낮은 저항으로 충분한 조건을 지니고 있으나 인듐의 재료비의 상승과 확산으로 인한 소자열화, 불안정성 등의 문제점을 가진다. 이러한 문제점을 보완하기 위해서 새로운 물질의 개발이 요구되었고, 다양한 재료 및 구조의 개발이 진행되고 있다. 이러한 단일층 투명 전도막의 단점을 극복하기 위하여 산화물 전도막 사이에 얇은 은을 삽입한 형태의 다층 투명 전도막을 제작하여 그 특성을 분석하는 연구가 활발히 진행되고 있다 [1-4]. 산화물/금속/산

a. Corresponding author: sylee@cju.ac.kr

Copyright ©2013 KIEEME. All rights reserved.
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

화물에서 매우 얇은 금속박막은 가시광선 영역의 빛은 투과하고 적외선 영역의 빛은 반사하는 광학적 특성을 가지고 있어서 투명 절연 박막과 투과성 전기 전도막으로 이용하기에 적절하다. 예로, $\text{Bi}_2\text{O}_3/\text{Au}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 와 같은 산화물/금속/산화물의 샌드위치 구조에서 금속 박막층은 반사광을 재 반사시키는 상부막을 형성시키고, 산화물 박막은 반사 억제층 (antirejection coating) 역할을 하여 가시광선의 광 투과율을 증진시킨다 [5]. 금속 박막의 경우 광학적 성질은 결정 결합, 성막 시 발생하는 응력 및 자유전자의 밀도 등에 의존하지만 아주 얇은 경우 박막의 형상이 광학적 성질에 큰 영향을 미친다. 금속들 중에서도 Ag의 경우 모든 가시광선 영역에서 빛을 거의 흡수하지 않으므로 무색을 띠지만 Au, Cu의 경우는 노란색 영역을 흡수하므로 노란 빛깔을 띠게 되어 외관상 Ag에 비하여 좋지 않고 Ag의 비저항이 가장 낮기 때문에 Ag를 이용한 연구가 진행되고 있다 [6,7]. 본 연구에서는 glass 위에 SIZO/Ag/SIZO의 3층 구조를 가지는 다층박막을 제작하여 Ag 두께의 변화에 따른 광학적 변화를 살펴보고 높은 광 투과율이 관찰되는 조건을 찾아 그 원인을 분석하여 보았다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 SIZO 박막을 RF 마그네트론 스퍼터링을 이용하여 다층 박막으로 제조하였고 Ag(99.999%) 박막은 thermal evaporator를 이용하여 증착하였다. 기판은 $12 \times 12 \times 0.7$ mm 크기의 Corning Glass를 사용하였으며 기판 표면 위의 유기물을 제거하기 위해서 아세톤, 메탄올, DI Water 순으로 각각 5분 동안 초음파 세척한 후 N_2 Gas를 이용하여 건조하였다. 세척된 기판을 chamber에 장착한 후 로타리 펌프로 5.0×10^{-3} torr 이하까지 진공을 유지한 후 터보펌프를 이용하여 초기진공 2.0×10^{-6} torr 이하까지 진공상태를 유지하였다. 플라즈마 활성화 가스로는 Ar를 사용하였으며 MFC (mass flow controller)로 가스 유입량을 30 sccm으로 유지시키며 작업진공을 3.0×10^{-3} torr가 되도록 하였다. Pre-sputtering을 5분 동안 실시한 후 SIZO 박막은 상, 하층 동일 조건으로 RF power 30 W으로 각각 30 nm의 두께를 증착하였다. SIZO 박막의 사이의 metal층인 Ag 박막 증착 시에는 초기진공 4.0×10^{-6} torr 이하까지 진공상태를 유지하고 10분의 예열을 통하여 Ag를 충분히 녹인 후

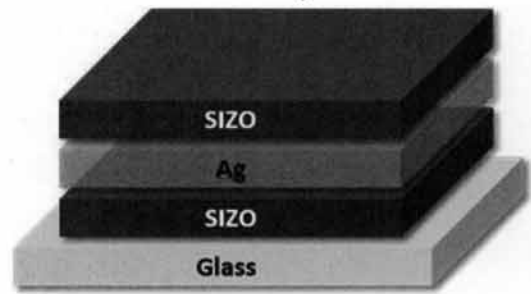


Fig. 1. Schematic illustration of SIZO/Ag/SIZO multilayer on glass.

5 nm부터 15 nm까지 thickness monitor로 증착 두께를 확인하였다. 모든 실험은 상온에서 진행하였으며 총 3층 구조의 다층 박막을 그림 1에 도식화하였다. 분석을 위하여 사용한 장비는 광학적 특성을 평가하기 위하여 UV/Vis-NIR spectrophotometer을 이용하여 광 투과율을 측정하였다. Wavelength의 측정 범위는 200~1,400 nm로 하였으며 reference는 air base로 설정하였다. 그리고 SIZO/Ag/SIZO 다층 박막의 계면에서의 산소화산 여부를 확인하기 위하여 Auger electron spectroscopy의 depth profiling을 이용하여 깊이 별 성분 분석을 실시하여 각 층간 계면에서의 원소 농도를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 SIZO/Ag/SIZO 다층막의 Ag 두께 변화에 따른 광학적 특성을 나타내었다. Ag의 두께는 5 nm부터 15 nm까지 변수로 설정하였다. Ag의 두께 변화에 따라 Ag층이 너무 얇은 경우 중간에 증착되어 섬 구조의 형태를 이루다가 점점 두꺼워지면서 연속적인 박막형태로 변화하게 되고, 이에 따라 상부층 SIZO의 증착조건 변화에 광 투과율이 많은 영향을 받게 된다 [8,9]. Ag의 두께가 5~9 nm일 때 Ag의 결정이 layer를 이루지 못하고 각각 떨어져있는 섬 구조의 형태로 불규칙하게 성장하게 되면서 박막 표면에서 빛의 scattering으로 인하여 가시광 영역에서의 낮은 광 투과율을 나타내었다. 그러나 삽입된 Ag의 두께가 점차 증가하면서 Ag가 layer를 이루게 되면서 SIZO/Ag/SIZO 다층막의 투과율도 점차 증가하였다. 15 nm의 Ag층이 삽입된 다층막의 550 nm의

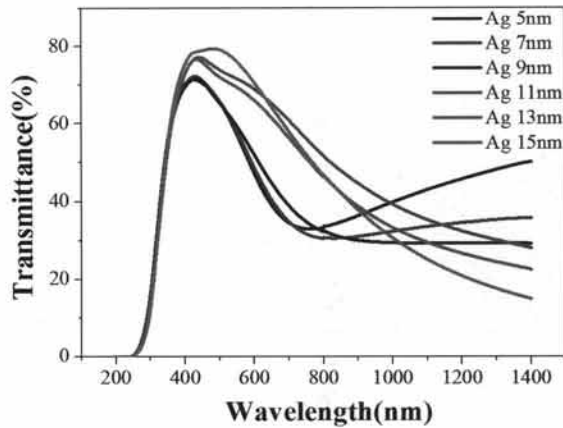


Fig. 2. Optical transmittance spectra of SIZO/Ag/SIZO multilayer as a function of the Ag thickness.

파장 영역에서는 평균 80%의 가장 높은 투과율을 나타내었다. IR 영역에서는 Ag의 두께가 증가함에 따라 광 투과율이 선형적으로 감소하는 것을 볼 수 있는데 이는 surface plasmon resonance가 SIZO/Ag/SIZO 다층막의 캐리어 농도에 의존하기 때문이다.

그림 3은 Ag layer의 두께에 따른 SIZO/Ag/SIZO 다층막의 광학적 밴드갭 (E_g)를 나타낸 그래프이며 구하는 식은 다음과 같다 [10].

$$ahv = A(hv - E_g)^2 \quad (1)$$

여기서 a 는 흡수계수, $h\nu$ 는 빛의 photon energy, A 는 상수, E_g 는 광학적 밴드갭을 나타내며 각 시편의 투과율 (T)과 박막 두께(d)를 이용한 식 (2)를 통해 구할 수 있다.

$$T = T_0 \exp(-ad) \quad (2)$$

광학적 밴드갭은 흡수계수 $(ahv)^2$ 대 광자에너지($h\nu$)의 그래프에서 곡선의 선형 영역으로부터 외삽(extrapolation)한 직선이 광자에너지 축과 교차할 때의 값으로부터 얻어진다. 광학적 밴드갭의 값은 크게 변화하지는 않았으나 전체적으로 보았을 때 약간의 감소하는 경향을 띄고 있었다. 이러한 현상은 Ag의 두께가 증가함에 따라 전자의 농도도 함께 증가하게 되는데 적당히 도핑된 정도로 넘어선 과도한 캐리어들이 불순물로서 작용하기 때문에 potential fluctuation 의하여 광학적 밴드갭이 좁아지게 되는 것이다 [11,12].

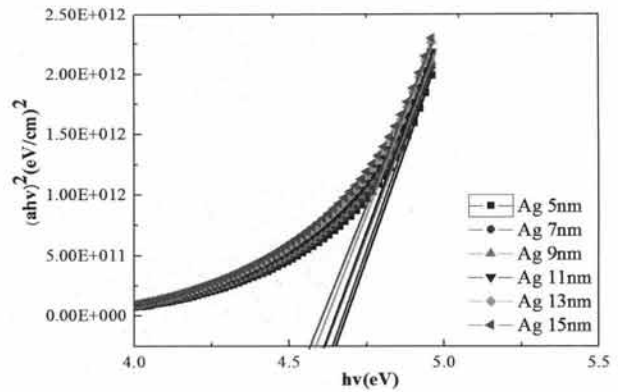


Fig. 3. The variations in optical band gap with Ag thickness.

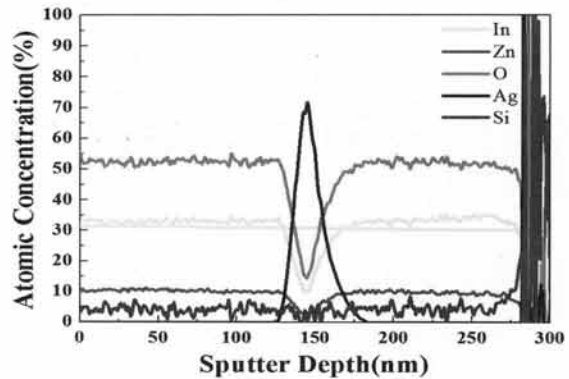


Fig. 4. AES depth profile of SIZO/Ag/SIZO multilayer on a glass substrate under optimized condition.

그림 4는 SIZO/Ag(15 nm)/SIZO 다층막의 AES 분석 결과를 나타내었다. AES 분석 결과 하부층의 SIZO와 상부층의 SIZO의 계면에서 Ag와 반응이 일어난 것을 확인하였다. 또한 상, 하부층의 박막이 대칭적으로 나타난 것으로 보아 SIZO가 동일한 성분과 두께로 막을 형성한 것을 확인하였다.

4. 결론

본 연구에서는 SIZO/Ag/SIZO 구조의 투명한 다층 박막을 제작하여 Ag의 두께에 따른 광학적 특성을 관찰하고 적합한 박막을 제조하기 위한 연구를 진행하였다. 그 결과 Ag가 15 nm일 때 550 nm 파장에서 약 80%의 투과율로 가장 높은 값을 나타내었다. Ag

의 두께가 증가할수록 가시광 영역에서는 높은 투과율을 IR영역에서는 낮은 투과율을 나타내었다. 이는 SIZO/Ag/SIZO 다층박막이 투명 전도막으로써 다양한 분야에서도 널리 사용되고 있는 것은 물론이고 낮은 방사율을 특성으로 지니는 low-e 유리로의 응용과 높은 활용가능성이 뛰어나다는 것을 확인하였다.

감사의 글

본 논문은 한국에너지기술평가원의 에너지·자원 기술 개발 사업-전략 응용기술인 “에너지 절약을 위한 그린빌당용 로이코팅 창호 기술 개발” 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] K. H. Choi, H. J. Nam, J. A. Jeong, S. W. Cho, and H. K. Kim, *Appl. Phys. Lett.*, 92, 223302 (2008).
- [2] Y. S. Park, H. K. Park, J. A. Jeong, K. H. Choi, S. I. Na, D. Y. Kim, and H. K. Kim, *J. Electrochem. Soc.*, 156, H588 (2009).
- [3] H. K. Park, J. A. Jeong, Y. S. Park, S. I. Na, D. Y. Kim, and H. K. Kim, *Electrochem. Solid-State Lett.*, 12, H309 (2009).
- [4] H. K. Park, J. W. Kang, S. I. Na, D. Y. Kim, and H. K. Kim, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 93, 1248 (2009).
- [5] A. K. Kulkarni, K. H. Schulz, T. S. Lim, and M. Khan, *Thin Solid Films*, 345, 273 (1999).
- [6] M. Fahland, P. Karlsson, and C. Charton, *Thin Solid Films*, 392, 334 (2001).
- [7] Y. Morinaga, K. Sakuragi, N. Fujimura, and T. Ito, *J. Cryst. Growth*, 174, 691 (1997).
- [8] M. Yamamoto and T. Namioka, *Appl. Opt.*, 31, 1612 (1992).
- [9] C. Charton and M. Fahland, *to be Published in Proceedings of Conference on Plasma and Surface Engineering(PSE)* (2000).