



산소 가스 유량비 변화에 따른 ITO 박막의 전기적 특성에 관한 연구

최동훈*, 금민중, 전아람, 한전건

성균관대학교 신소재공학과 플라즈마 응용 표면기술 연구센터

A Study on the Electrical Properties of ITO Thin Films with Various Oxygen Gas Flow Rate

Dong H. Choi*, Min J. Keum, A. R. Jeon, Jeon G. Han

Center for Advanced Plasma Surface Technology, SungKyunKwan University, 300 ChünChun-dong, Jangan-gu, Suwon 440-746, Korea

(Received May 15, 2007 ; accepted June 26, 2007)

Abstract

To prepare the transparent electrode for electronic devices such as flat panel or flexible displays, solar cells, and touch panels; tin doped In_2O_3 (ITO) films with low resistivity and a high transparency were fabricated using a facing target sputtering (FTS) system at the various oxygen gas flow rate. The carrier concentration and mobility of ITO films were measured by Hall Effect measurement. And the transmittance was measured using the UV-VIS spectrometer. As a result, we can obtain the ITO thin films prepared at 10% oxygen gas flow ratio, thickness 150 nm with transmittance 85% and resistivity $8.1 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ and surface roughness 5.01 nm.

Keywords: ITO, Facing targets sputtering, Mobility, Carrier concentration

1. 서 론

현재 Display 산업에서 투명전도막으로 널리 사용되고 있는 Indium Tin Oxide(ITO) 박막은 가시광 영역에서의 높은 투과도와 전도도를 갖는 특성 때문에 solar cell이나 display 소자의 투명 전극으로 널리 사용되며 glass 기판을 모재로 하여 합성되고 있다. 하지만 최근 가볍고 깨지지 않는 장점을 가진 Flexible display의 필요성이 증대되면서 기판으로 사용되고 있는 glass를 polymer 소재로 대체하기 위한 많은 연구가 전 세계적으로 진행되고 있다¹⁻⁵⁾. 기존 glass 기판에 비해 polymer 기판은 더 얇으며, 가볍고, 유연성이 큰 장점을 가지고 있지만⁶⁾ 고온 증착 공정 시 소재의 기계적 물성의 변화^{7,8)}와 플라즈마 내 고 에너지 입자에 의해 기판이 손상되는 취약점을 갖고 있다⁹⁾. 고온의 공정 온도

는 기판의 변형을 유발하며, 기판의 표면 거칠기 상승은 Flexible display 소자의 수명을 단축시키는 단점을 초래한다^{10,11)}. 이러한 단점을 극복하기 위해서는 ITO 박막 증착 시 저온공정과 기판의 손상을 줄일 수 있는 플라즈마 증착원이 필요하다. 본 실험에서는 두 개의 타겟이 일정한 거리를 두고 마주보고 있으며, 기판이 두 타겟 사이에서 발생한 플라즈마와 이격되어 있는 facing targets sputtering (FTS) system을 사용하여 ITO 박막을 증착하였다. FTS system의 경우, 박막 증착 시 고에너지 입자들의 충돌에 의한 기판 온도 변화가 기존의 planar magnetron sputtering system 보다 저온에서 ITO 박막을 합성할 수 있다. 따라서 저온에서 glass와 PET 필름 상에 산소 가스 유량비 변화에 따라 ITO 박막을 증착하였으며 증착된 박막의 전기적 특성 변화를 조사하였다.

*Corresponding author. E-mail : knight4you@skku.edu

Table 1. Deposition conditions of ITO thin films

Parameters	Conditions
Base pressure	2.66×10^{-3} Pa
Working pressure	0.133 mPa
Substrate	Soda-lime glass, PET film
Target	Indium tin oxide (SnO ₂ 10 wt.%)
Target-substrate distance	500 mm, 100 mm
Power	DC 500 W
Substrate temperature	Room temperature
Gas ratio (Ar : O ₂)	O ₂ (0, 5, 10, 15, 20%)

2. 실험 방법

본 연구에서 두 개의 타겟이 서로 마주 보고 있으며 각 타겟의 뒷면에는 서로 다른 극을 지닌 영구 자석이 부착되어 있는 FTS 장치를 이용하여 glass와 polymer 기판 위에 ITO 투명 전도막을 증착하였다. 타겟은 In₂O₃와 SnO₂의 조성비가 90:10 (wt%)을 갖는 ITO 세라믹 타겟을(99.99%) 사용하였으며 타겟 간 거리는 100 mm로 고정하였다. 기판으로는 glass와 PET(polyethylene terephthalate) 필름을 사용하였으며 ITO 박막의 전기적 특성을 알아보기 위해 아르곤과 산소의 혼합 가스를 사용하여 산소 가스 유량 비를 변화시켜 ITO 박막을 약 150 nm의 두께로 증착하였다. 또한 최적의 산소 분율을 알기 위해 아르곤과 산소의 혼합가스 0.133 mPa에 대한 산소의 분율에 따른 비저항의 변화를 조사하였고 타겟과 기판 사이의 거리를 50 mm와 100 mm로 하여 각각의 비저항을 측정하여 타겟과 기판과의 거리가 전기적 성질에 미치는 영향을 조사하였다. 나머지 다른 자세한 증착 조건들은 표 1에 나타내었다. 증착된 ITO 박막의 전기적 특성은 4-point probe로 비저항을 측정하고 Hall effect measurement를 이용하여 carrier concentration과 hall mobility를 측정하였으며 가시광 영역에서의 광투과도는 UV/VIS-Spectrometer를 사용하여 측정하였다. 또한 ITO 박막의 결정성이나 그에 관한 정보는 X-ray diffraction (XRD)를 이용하였고 및 표면 조도 분석은 Atomic force microscopy(AFM)을 통하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1(a)는 산소 가스 유량비에 따른 ITO 박막의 비저항을 나타낸 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 산소 가스 유량비가 10%에서 가장 낮은 비저항 값 $8 \times 10^{-4} [\Omega \cdot \text{cm}]$ 를 갖는 것을 알 수 있다. 이는 그

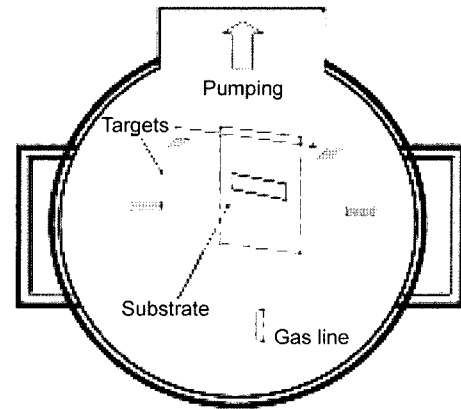


Fig. 1. Schematic diagram.

림 1(b)와 (c)에 나타난 캐리어 농도와 이동도의 결과와도 관계가 있음을 알 수 있다 초기 산소 가스의 유입이 10%까지 증가할수록 ITO 박막 내의 산소 공공이 감소하여 캐리어 농도가 약간 감소함을 보이고 있지만 이동도의 증가로 인해 비저항이 약간 감소함을 보이고 있다.

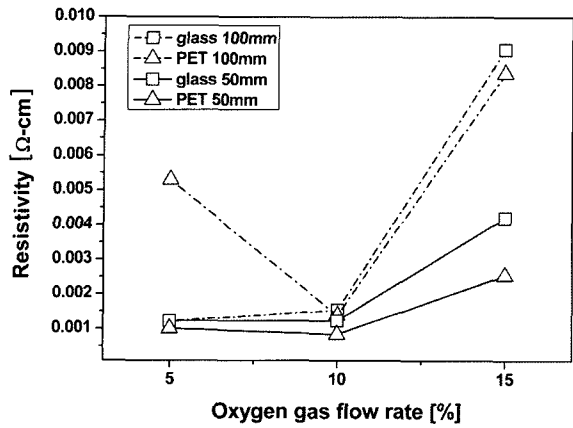
그러나 10% 이상의 산소 가스 유량비 영역에서는 비저항이 증가함을 보이고 있다. 이는 ITO 박막 내의 산소 공공의 감소뿐만 아니라 막 내의 침입형 과잉 산소의 증가로 인한 캐리어 농도의 급격한 감소와 이동도의 포화 때문에 비저항이 증가하는 것으로 생각된다.

또한 타겟과 기판 사이의 거리를 50 mm와 100 mm로 하였을 때의 전기적 특성을 점선으로 나타내었다. 산소 가스 유량비가 10% 이상일 때 비저항이 증가하는 동일한 경향을 보이고 있지만 같은 산소 가스 유량비 15%일 때 50 mm와 100 mm의 비저항 차이는 타겟과 기판 사이의 거리 증가로 인한 기판에 도달하는 스퍼터된 입자들의 에너지가 상대적으로 감소하게 되고 이로 인해 기판 표면에서의 충분한 확산 에너지를 갖지 못하여 형성되는 혼재된 미세구조 상들의 산란에 의한 비저항 증가로 사료된다.

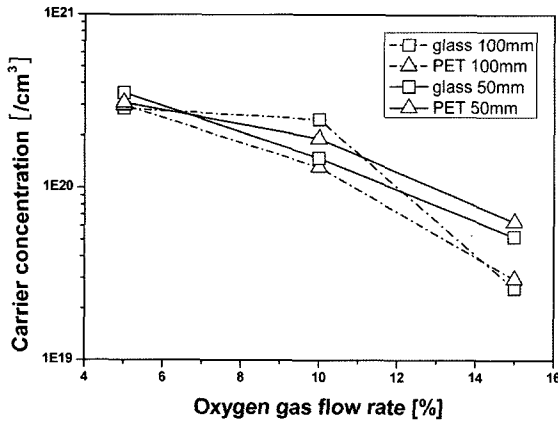
그림 2는 산소 가스 유량비 변화에 따라 기판 타겟 거리 50 mm 조건에서 증착된 ITO 박막의 광학적 특성을 나타낸 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 산소 가스 유량비 10%와 15%인 경우 가시광 영역에서의 투과율은 80% 이상을 보이고 있으며 입사 파장 550 nm에서의 광투과율은 90% 이상을 보이고 있다. 일반적으로 광투과도 스펙트럼의 흡수단(absorption edge) 영역에서의 광투과율은 다음과 같은 식으로 주어진다.

$$T = A \exp(-\alpha t) \tag{1}$$

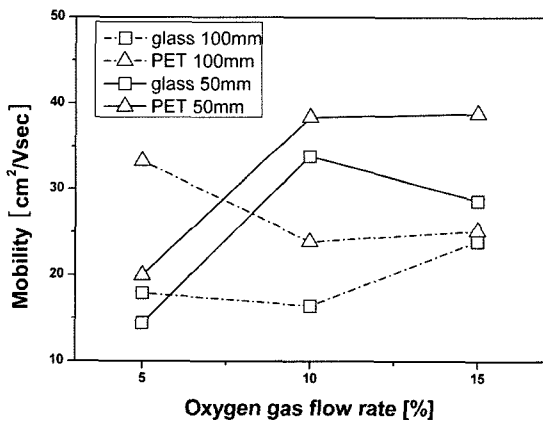
A: 상수, α : 흡수 계수, t: 박막의 두께.



(a)



(b)



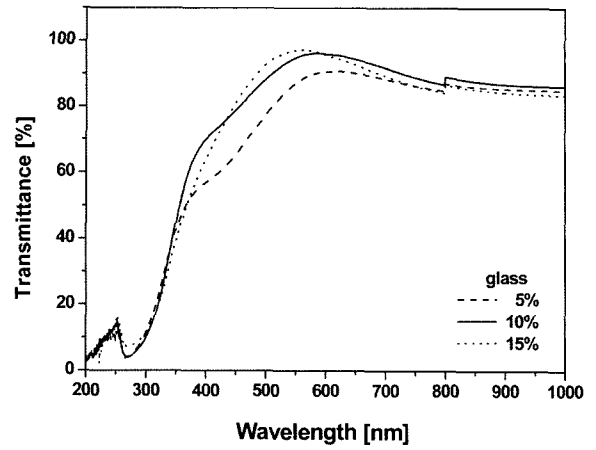
(c)

Fig. 2. Electrical properties of ITO thin films with oxygen gas flow rate.

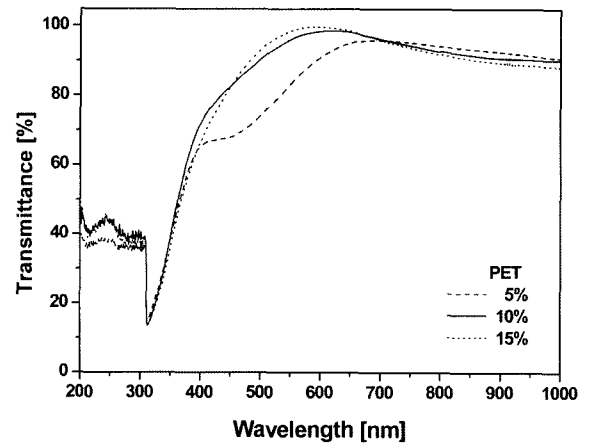
A는 흡수단에서 거의 1이기 때문에 박막의 두께를 알면 식 (1)를 이용하여 α 를 구할 수 있다. 또한 직접 천이에 대한 흡수 계수와 입사광의 에너지 ($h\nu$) 사이의 관계식 (2)로부터

$$(\alpha h\nu) = A(h\nu - E_g)^{1/2} \quad (2)$$

각 박막의 광학적 띠 간격 E_g 를 그림 3과 같이 구할 수 있으며 Glass 기판을 사용한 경우의 E_g 는



(a)



(b)

Fig. 3. Optical transmittance of ITO thin films.

3.45~3.55 eV, PET 기판을 사용한 경우에는 3.41~3.45 eV의 값을 갖는 것을 그림을 통해 알 수 있다. 흡수단의 파장은 산소의 분율이 증가함에 따라 캐리어 농도가 감소하면서 파장이 긴 쪽으로 이동하며 이것은 Burstein-Moss shift로 인한 것이다. 박막의 투과도는 가시광 영역에서 85% 이상의 투과도를 나타낸다. 그림 4는 동일 샘플의 표면 거칠기를 측정 한 것이며, 산소 가스 유량비 그림 4(a) 5%, (b) 10%, (c) 15%에서 제작된 ITO 박막의 표면 거칠기는 각각 R_{rms} (Roughness root mean square): 2.68 nm, 5.01 nm, 6.11 nm이다. 이는 산소 가스 유량비가 증가함에 따라 감소되는 방전전압으로 인한 스퍼터되는 입자 에너지의 감소뿐만 아니라 In^{3+} 자리를 치환하는 Sn^{4+} 이온의 형성 보다 $Sn^{+}O$ 의 형성이 상대적으로 증가하여 ITO 박막의 거칠기가 증가하는 것으로 사료된다.

이러한 박막 내의 $Sn^{+}O$ 의 증가는 불순물 산란 효과를 발생시켜¹²⁾ 캐리어 이동도의 감소로 인한 비저항 증가의 원인이 되는 것으로 그림 1에 나타난 산소 가스 유량비가 10% 이상 증가함에 따른 비저항 증가와 같은 맥락으로 해석할 수 있다.

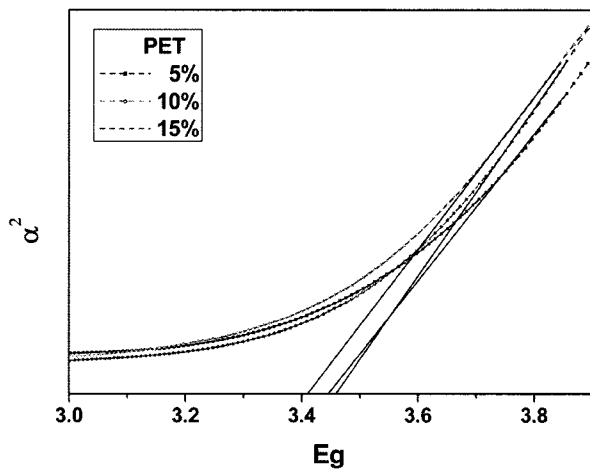
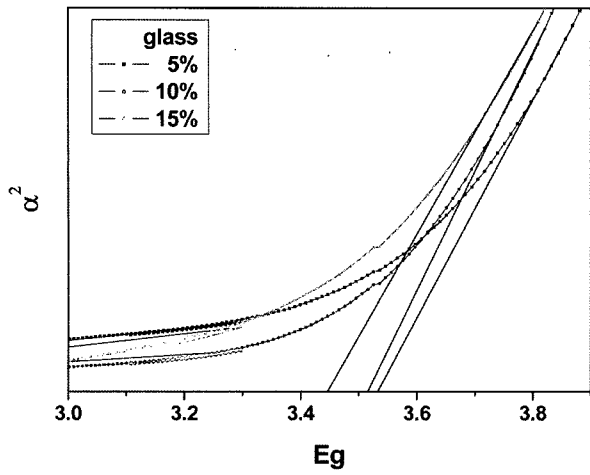


Fig. 4. Optical bandgap of ITO thin films.

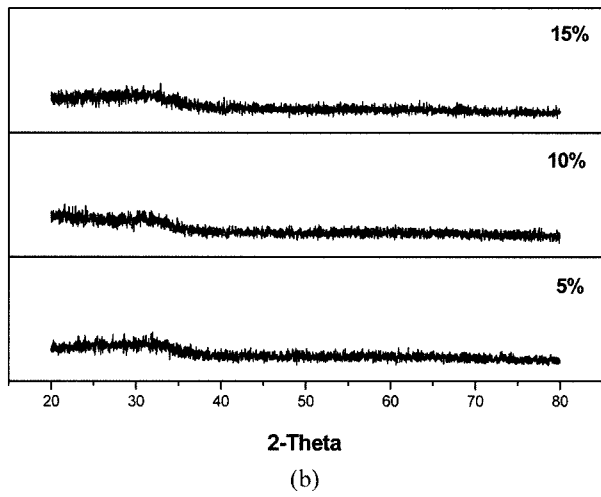
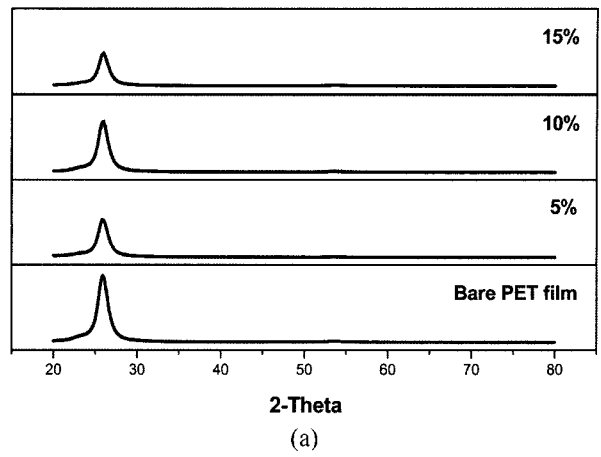


Fig. 6. XRD patterns of ITO thin films.

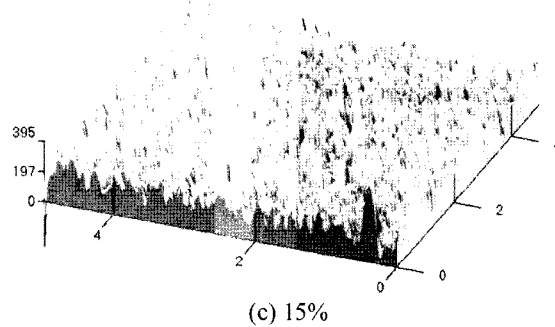
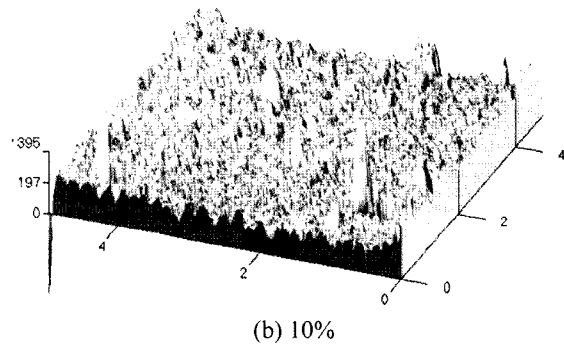
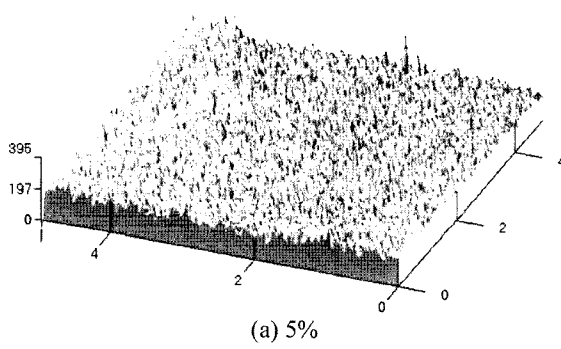


Fig. 5. Surface morphology of ITO thin films.

그림 5는 glass와 PET 기판 상에 산소 가스 유량 비 변화에 따라 제작된 ITO 박막의 XRD 회절 패턴을 나타낸 것이다. 모든 조건에서 비정질 상임을 알 수 있으며 이러한 비정질 상에서 ITO 박막의 캐리어 이동도의 주된 인자는 앞서 언급한 바와 같이 과잉 산소에 의한 전자의 포획 또는 침입형 구조의 불순물들(Sn^{+O})에 의한 산란과 표면 형상이라 할 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서 FTS 장비를 이용하여 산소 가스 유량비 변화에 따라 glass 및 PET 기판 상에 제작된 ITO 박막을 제작하여 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

ITO 박막의 비저항은 유입되는 산소 가스 유량비에 따라 감소하며 특정 전이 영역(10%) 이상에서는 증가한다. 즉 초기 유입되는 산소 가스에 비해 전이 영역 이후에서 막 내의 산소 공공 및 이동도가 급격하게 변화되기 때문임을 확인할 수 있었다. 이는 캐리어 농도 및 이동도 변화를 통해 확인할 수 있었다. 또한 AFM 측정을 통해 표면 거칠기 변화 역시 ITO 박막 내의 캐리어 이동도에 영향을 미치는 것을 알 수 있었으며 광투과도를 통해 산소 가스 유량비에 따른 광학적 특성 변화는 크지 않음을 확인할 수 있었으며 glass 및 PET 기판 변화에 따른 비저항 및 광투과도의 변화 역시 크지 않음을 확인하였다.

후 기

The authors are grateful for the financial support

provided by the Korea Science and Engineering Foundation through the Center for Advanced Plasma Surface Technology (CAPST) at SungKyunKwan University.

참고문헌

1. G. H. Kim, K. S. Suh, 전자통신동향분석, 21(5) (2006) 129-140.
2. J. Jang, Displays Develop a New Flexibility, Materials Today, 9 (2006) 46-52.
3. H. Kim, J. S. Horwitz, G. P. Kushto, Z. H. Kafafi, D. B. Chrisey, Appl. Phys. Lett., 79 (2001) 284.
4. D. Rudmann, F. J. Haug, M. Krejci, H. Zogg, A. N. Tiwari, Proceedings of the 16th European Photovoltaic Solar Energy Conference, (2000) 298.
5. A. Romeo, M. Arnold, D. L. Batzner, H. Zogg, A. N. Tiwari, Proceedings of PV in Europe: From PV Technology to Energy Solutions, (2002) 377.
6. G. Gu, P. E. Burrows, S. Venkatesh, S. R. Forrest, M. E. Thompson, Opt. Lett., 22(3) (1997) 172-174.
7. S. K. Park, J. I. Han, W. K. Kim, M. G. Kwak, in Proc., Society for Information Display, (2000) 514-517.
8. A. Stein, A. Liss, S. Fields, in Proc., Society for Information Display, (1997) 817-820.
9. K. Tominaga, K. Kuroda, O. Tada, Jpn. J. Appl. Phys., 27 (1988) 1176.
10. H. M. Kim, S. K. Jeung, J. S. Ahn, Y. J. Kang, C. K. Je, Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 1.
11. K. Noda, H. Sato, H. Itaya, M. Yamada, Jpn. J. Appl. Phys., 42, (2003) 1.
12. Frank G. Kostlin H. Appl. Phys. A., 27 (1982) 7.