

# 대향 타겟식 스퍼터링으로 증착한 ITO 박막이 적용된 유기발광다이오드의 특성

김상모<sup>\*</sup>·이상민<sup>\*\*</sup>·금민종<sup>\*\*\*</sup>·이원재<sup>\*\*</sup>·김경환<sup>\*†</sup>

<sup>\*†</sup>가천대 전기공학과, <sup>\*\*</sup>가천대 전자공학과, <sup>\*\*\*</sup>주성 엔지니어링

## Characteristics of OLED Cells Fabricated with ITO Films Deposited by using Facing Target Sputtering (FTS) System

Sangmo Kim<sup>\*</sup>, Sangmin Lee<sup>\*\*</sup>, Min Jong Keum<sup>\*\*\*</sup>, Won Jae Lee<sup>\*\*</sup>  
and Kyung Hwan Kim<sup>\*†</sup>

<sup>\*†</sup>Dept. of Electrical Engineering, Gachon Univ.

<sup>\*\*</sup>Dept. of Electronic Engineering, Gachon Univ., <sup>\*\*\*</sup>Jusung Engineering Ltd.

### ABSTRACT

In this study, we prepared OLED cell with ITO (Indium Tin Oxide) films grown on the glass substrate by facing targets sputtering. Before fabrication of OLED cells, we investigated properties of ITO films deposited at various sputtering conditions. To investigate properties of as-prepared films, we employed four-point probe, UV-VIS spectrometer, X-ray diffractometer (XRD), field emission scanning electron microscopy (FE-SEM), hall-effect measurement. As a results, as-prepared ITO films have high transmittance of over 85 % in the visible range (300-800 nm) and a resistivity of under  $10^{-4}$  ( $\Omega$ -cm). Their resistivity increased as a function of oxygen gas flow and substrate temperature. OLED cell with ITO films were fabricated by thermal evpoeartor. Properties of OLEDs cell referring to properties of ITO films.

**Key Words** : FTS, ITO, OLED

### 1. 서 론

현재 디스플레이 시장은 CRT (Cathode Ray Tube)를 대체하여 LCD (Liquid crystal display), PDP (PlamsPlasma Display Panel) 과 같은 평판 디스플레이가 주도하고 있다. 이런 가운데 소비자는 존보다 면적, 고화질의 디스플레이를 요구하고 있습니다. 최근들어 OLED (Organic Light Emitting Diode)소자를 사용하는 디스플레이뿐만 아니라, 조명 및 태양전지에 관한 연구가 주목을 받고 있다[1-2].

특히 OLED 소자는 유기발광물질을 이용하기 때문에 가볍고 힘이 가능하여 웨어러블 전자소자에 응용이 가능하다[2-3].

한편, 디스플레이의 성능 향상을 위해서 전극으로 사용되는 투명 전도성 산화물 (Transparent Conducting Oxides, TCOs)의 중요성을 더욱더 키지고 있다. 투명 전도성 물질로 사용하기 위해서 낮은 저항값과 가시광 영역 (300-800nm)에서 광투과도가 85 % 이상 높고, 특히 0.8-1.4  $\mu$ m 의 짧은 파장대인 근적외선 영역에서는 광 반사도가 높을 뿐만 아니라 화학적 안정한 특성을 가지고 있어야 한다. 현재까지 ZnO (Zinc Oxide), Metal doepd ZnO (Metal = Al, Ga), InSbO<sub>4</sub>, ITO (Indium Tin Oxide)등과 같은 물질이 이용되고 있다. 다양한 TCO 물질로써 가장 넓이 쓰이는 물질은 ITO 물질은 뛰어난 광투과율은 물론 낮은 저항값을 가지고 있어서 디스플레이 뿐만 아니라, 태양광전지, 센서 등의 다양한 분야에 사용되고 있다[4-5].

<sup>†</sup>E-mail: khkim@gachon.ac.kr

투명전극으로 사용되기 위해서 기판위에 증착된 ITO 박막의 제조방법은 CVD (chemical vapor deposition), Spin-spray, Sol-gel, Thermal evaporation, magnetron sputtering 등이 있다. Magnetron sputtering 법은 대면적 증착이 가능하고, 균일한 박막 증착이 가능하다. 또한 인가전력, 작업압력, 증착온도, 산소분압 등과 같은 박막증착 조건을 조절하여 금속부터 산화물질까지 다양한 박막을 증착할 수 있다. 하지만 일반적인 마그네트론 스퍼터링의 장점에도 불구하고, 기판의 위치가 방전시 발생하는 플라즈마 내부의 고에너지 이온에너지에 노출되기 때문에 충돌로 인한 박막의 손상될 수 있다[6-7].

본 연구에서는 두 개의 캐소드가 서로 마주 보고 있고, 박막이 증착되는 기판은 두 타겟의 중앙에 위치한 구조를 가지는 대향 타겟식 스퍼터링 장치(Facing Targets Sputtering, FTS) 장치를 이용하여 ITO 박막을 증착하고 특성을 분석하였다. 그리고 FTS로 제작한 ITO 박막을 이용하여 OLED Cell를 제작하여 다양한 특성을 가지는 ITO 박막이 OLED에 미치는 영향을 확인하였다.

## 2. 실험 방법 및 측정

### 2.1 대향 타겟식 스퍼터링 장치

ITO 박막을 제작하기 위해서 Fig 1 (a)과 같은 대향 타겟식 스퍼터링 장치(Facing targets sputtering, FTS)를 이용하였다. FTS 장치내에서 발생한 플라즈마는 두 캐소드 사이에 발생하고, 캐소드 뒷면에 장착된 영구 자석에 의해서 구속된다(Fig 1 (b)). 따라서 일반적인 스퍼터링 장치와 비교해서 고에너지 입자의 충돌에 의한 기판 및 박막의 충돌 손상을 최소화할 수 있다. 또한 서로 마주 보고 있는 두 타겟의 캐소드 전위로 인해  $\lambda$ -전자는 두 타겟 사이를 왕복 운동을 하고 높은 분위기 가스의 이온화율에 의하여 1 mTorr 이하의 가스압에서도 안정적인 방전을 유지하여 고품질의 박막 제작이 가능하다[8-9].

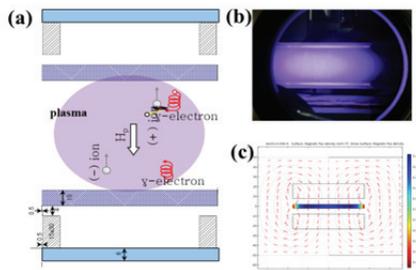


Fig. 1. (a) Schematic diagram of Facing Targets Sputtering (FTS) system, (b) photo image of discharge plasma, and (c) magnetic field simulation.

### 2.2 ITO 박막의 제작

ITO 박막 제작에 앞서 Soda-lime 유리 기판 세척을 Standard Cleaning Step (SC-1)을 이용하여 진행하였다. 기판은 과산화수소수( $H_2O_2$ )와 암모니아수( $NH_4OH$ ) 그리고 증류수( $H_2O$ )를 1:1:5 비로 혼합한 용액에 넣고 15분간 초음파 세척하였다. 그리고 아세톤, 에탄올 그리고 DI Water 용액에 각각 넣고 15분간 초음파 세척하여 기판 표면에 남아 있는 불순물질을 제거하였다. 세척 후 질소 가스를 이용하여 불기를 제거하고 Dry oven에서 건조하였다. FTS 장치의 챔버 내 압력은 로터리 점프와 터보 펌프를 이용하여  $10^{-6}$  Torr 이하를 유지하였다. 자세한 ITO 박막의 증착 조건은 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Sputtering conditions

Parameter	Conditions
Targets	ITO targets (250×50mm) ( $In_2O_3 : SnO_2 = 90 : 10$ wt%)
Substrate	Soda-lime glass (25×50 mm)
$D_{T-T} / D_{T-S}$	100 mm / 100 mm
Bass pressure	$< 10^{-6}$ Torr
Working pressure	1 mTorr
Input power	400 W
Gas ratio $O_2/(Ar+O_2)$	0 - 10%
Substrate Temperature	R.T - 150 °C

\* $D_{T-T}$ : 두 타겟 간의 거리 (Distance Target to Target)

\* $D_{T-S}$ : 타겟과 기판 간의 거리 (Distance Target to Substrate)

### 2.3 OLED 소자의 구조 및 제작

OLED소자를 제작하기 위해서 양공 수송층으로 N,N'-diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)-benzidine (TPD), 발광층으로 tris(8-quinolinolato) aluminium (Alq3), 음전극으로 알루미늄 금속 전극을 사용하였다. TPD, Alq3, Al 음전극은 유기물 손상이 적은 열 증착 (Thermal evaporator) 방법을 이용하였다. ITO 박막은 FTS를 이용하여 제작하였다. Fig. 2는 OLED 소자의 구조와 두께를 나타내었다.

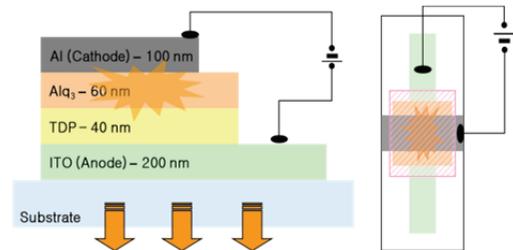


Fig. 2. Schematic diagram of OLED cells with ITO prepared by Facing Targets Sputtering.

OLED 소자 발광은 ITO 전극(폭 5 mm)과 Al 음전극(폭 3mm)가 교체되는 부분에서 발생하며, 발광면적은 15mm<sup>2</sup>이다.

### 2.4 특성 평가

제작된 박막의 특성은 Four-point probe (CMT-SR1000N), UV-Vis spectrometer (HP8453), X-ray Diffraction (Rigaku D/MAX-2200, λ = 1.54056 Å, 40 kV, 20 mA)을 통해서 분석하였다. 제작된 OLED 소자의 특성은 Keithley617 & Keithley236를 이용하여 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig 3은 O<sub>2</sub>/ (O<sub>2</sub>+Ar) 가스 유량비와 기판 온도에 따른 ITO 박막의 전기적특성을 나타낸 것이다.

투입된 산소 가스량이 증감함에 따라서 ITO 박막의 ITO 박막은 전기적 특성이 개선됨을 확인하였다. 이것은 산소가 투입되면서 박막 내에 자리잡고 있는 Sn<sup>4+</sup> 이온에 의한 In<sup>3+</sup>이온 자리에 치환되거나, In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 자리에 산소 공공 자리에 침입형 산소가 들어가면서 전자의 이동도가 개선되었기 때문이다. 그러나 10% 이상의 산소가 투입되면서 산소 공공의 감소로 인하여 이동도가 감소하고, 또한 캐리어 농도가 감소하기 때문이다.

또한 기판 온도가 증가하게 되면 박막 내부 Sn<sup>4+</sup> 이온의 In<sup>3+</sup> 이온과 치환되는 양이 증가하게 되어 이동도와 캐리어 농도가 증가하게 되어 저항값이 감소하게 된다[10-11].

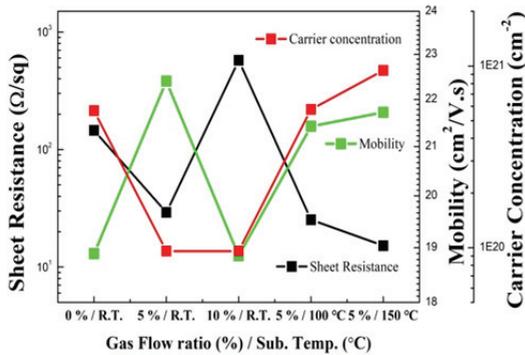


Fig. 3. Sheet resistance, and carrier concentration, mobility of ITO films deposited at various condition (Oxygen gas flow ratio and Substrate temperature).

Fig 4는 산소 가스 유량비 및 기판 온도에 따른 550 nm에서 광투과율을 나타내었다. 기판 온도에 따른 광투과율은 큰 영향은 거의 없었지만, 산소 가스 투입량이 증가함에

따라서 ITO 박막의 광투과율은 증가하였다. 이것은 산소 가스 투입량이 증가하게 되면 ITO 박막의 결정이 우수해지고, 입자의 크기가 증가하여 표면에서 광흡수 및 산란이 감소하기 때문이다. 하지만 기판온도가 증가하게 되면 광투과율이 감소된 이유는 온도가 증가할수록 결정성이 높아지지만, 박막의 결정면에서 빛의 산란이 증가하여 감소된 것으로 사료된다[12-13].

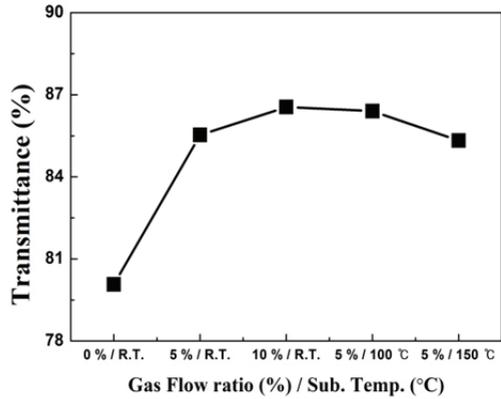


Fig. 4. Transmittance of ITO films prepared at various conditions (Oxygen gas flow ratio and Substrate temperature).

다양한 증착조건에 제작한 ITO 박막을 이용하여 제작한 OLED 소자의 전류 밀도 및 휘도 특성을 Fig 5와 6에 나타내었다.

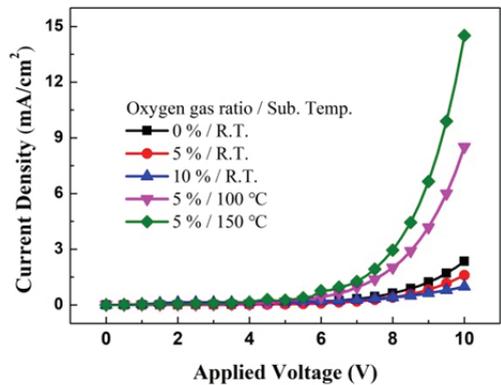


Fig. 5. Current density-Voltage property of OLED cells with ITO films prepared by various sputtering conditions.

OLED소자에 인가한 전압은 0.25간격으로 10V까지 측정하였다. 10V 전압에서 실온에서 제작한 ITO 박막이 적

용된 소자는 산소 가스 투입량이 증가함에 따라서 전류 밀도가 최대 2.5 A/cm<sup>2</sup>까지 증가하였지만, 기판 온도가 증가함에 따라서 최대 60배까지 증가한 15 A/cm<sup>2</sup>까지 증가함을 확인하였다. 따라서 ITO 박막의 특성 변화에 따라서 소자의 특성이 변화됨을 확인하였다. 이것은 OLED의 유기물층이 ITO 박막 표면에 증착되어 있기 때문에 ITO 박막에서 유기물 층으로 홀 수송 효율에 직접적인 영향을 가지게 된다. 따라서 투입 산소 증가와 기판 온도 증가에 따라서 박막 결정성과 표면의 특성이 개선되었기 때문에 사료된다[14-15].

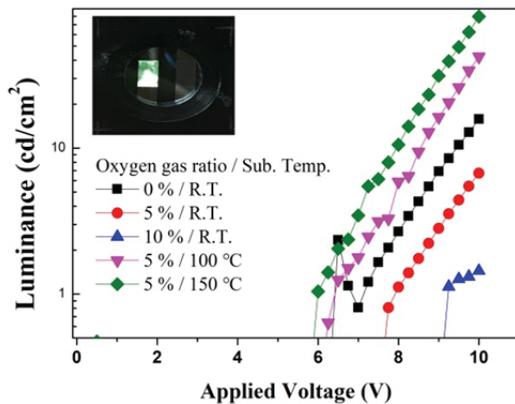


Fig. 6. Brightness-Voltage property of OLED cells with ITO films prepared by various sputtering conditions.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 FTS 스퍼터링 장치를 이용하여 다양한 공정조건에서 ITO 박막을 제작하였다. 그리고 열 증착 장비를 이용하여 제작된 ITO 박막이 적용된 OLED 소자를 제작하여 특성 변화를 확인하였다. ITO 박막 증착시 기판 온도 및 산소 가스 유량에 따라서 전기적 특성이 개선되었다. 또한 OLED 소자에 다양한 조건에서 증착된 ITO 박막을 적용하여 특성을 비교한 결과, 기판온도 150도, 산소 가스 유량비 5%에서 제작한 ITO 박막이 적용된 소자의 특성이 가장 우수하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 2016년도 산업통상부의 재원으로 한국에너지기술연구원 (KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(No. 20153010012090)와 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술연구원 (KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(No. 20174030201470)입니다.

#### 참고문헌

1. S. T. Yu, J. H. Chang, C. I. Wu, and Y. T. Tao, Effect of ITO Surface Modification on the OLED Device Lifetime 30, 7369-7376, 2014.
2. P. C. Gregory, "Flexible flat panel displays", John Wiley & Sons, 2005.
3. S. I. Kim, K. W. Lee, B. B. Sahu, and J. G. Han, "Flexible OLED fabrication with ITO thin film on polymer substrate", Japanese Journal of Applied Physics, 54, 090301, 2015.
4. H. Hosono, H. Ohta, M. Orita, K. Ueda, and M. Hirano, "Frontier of transparent conductive oxide thin films", Vacuum, 66, pp. 419-425, 2002.
5. T. Minami, "Present status of transparent conducting oxide thin-film development for Indium-Tin-Oxide (ITO) substitutes", Thin Solid Films 516, 17, 5822-5828, 2008.
6. Y. Hoshi, H. Kato, and K. Funatsu, "Structure and electrical properties of ITO thin films deposited at high rate by facing target sputtering", Thin Solid Films, 445, pp. 245, 2003.
7. K. Tominaga, T. Ueda, T. Ao, A. Katkoka, and I. Mori, "ITO films prepared by facing target sputtering system", Thin Solid Films, 194, pp. 281-282, 1996.
8. K. H. Kim, I. H. Son, K. B. Song, S. H. Kong, M. J. Keum, S. Nakagawa, and M. Naoe, "Thin film properties by facing targets sputtering system" Applied Surface Science, Vol. 169-170, pp. 410-414, 2001.
9. S. Kadokura and M. Naoe, "Sputtering Conditions for Depositing Co-Cr-Ta Films with Voidless Morphology and Nano-size Domains", IEEE Trans. on Magn. 32, 3816-3818, 1996.
10. J. W. Ko, B. Y. Jung, and T. Oh, "Annealing Effect with Various Ambient Conditions of ITO Thin Film", Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 14, No. 4, pp. 20-24, 2015.
11. M. J. Keum and K. H. Kim, "Transparent Conductive Thin Film for Top Emitting Organic Light Emitting Diodes by Sputtering Method", Japanese Journal of Applied Physics, 45, 10B, 8462-8465, 2006.
12. F. Niino, H. Hirasawa, K. Kondo, "Deposition of low-resistivity ITO on plastic substrates by DC arcdischarge ion plating", Thin Solid Films 411, 28-31, 2002.
13. J. W. Ko, B. Y. Jung, and T. Oh, "Annealing Effect with Various Ambient Conditions of ITO Thin Film", Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 14, No. 4, pp. 20-24, 2015.

- 
14. C. N. Li, C. Y. Kwong, A. B. Djurišić, P. T. Lai, P. C. Chui, W. K. Chan, S. Y. Liu, “Improved performance of OLEDs with ITO surface treatments”, *Thin Solid Films* 477, 1-2, 57-62, 2005.
15. F. Nüesch. “Importance of indium tin oxide surface acido basicity for charge injection into organic materials based light emitting diodes”, *Journal of Applied Physics* 87, 7973, 2000.
- 
- 접수일: 2018년 6월 21일, 심사일: 2018년 6월 25일,  
게재확정일: 2018년 6월 25일