

마그네트론 스퍼터링법으로 저온 증착한 IZO 박막의 특성 및 유연성 소자 적용 Study on IZO films deposited by magnetron sputtering at low temperature and its application for flexible display

박미량^{1,2*}, 강제욱², 김도근², 이권환², 송풍근¹
(1) 부산대학교, 재료공학과
(2) 한국기계연구원, 재료연구소, 기능박막그룹

초 록 : 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 100 °C 미만의 저온에서 플라스틱 기판위에 IZO(Indium Zinc Oxide) 박막을 증착하였다. 저전압 방전을 위하여 RF 중첩형 DC 마그네트론 스퍼터링 방법을 사용하였으며, 인가 power에 따른 IZO 박막의 전기적, 광학적 특성과 굽힘에 대한 신뢰성을 평가하였다. 플라스틱 기판이 변형되지 않도록 90 °C 이하의 범위에서 기판온도와 산소분압을 변화하여 $2 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 의 비저항, 95 % 이상의 가시광 투과도를 가지는 IZO 박막을 증착할 수 있었다. 또한 본 연구에서 비가열의 플라스틱 기판 위에 증착한 IZO 투명전극을 이용하여 유연성 OLED를 제작하였으며, 제작된 소자의 특성은 13.7 %의 최대양자 효율과 32.7 lm/W의 전력효율을 보였다.

1. 서 론

급속한 정보화 기술의 진전으로 언제 어디서나 정보를 접할 수 있는 유비쿼터스 컴퓨팅 시대로 접어들면서 네트워크 및 디지털 콘텐츠, 휴대 정보기기, 유무선 통신 등의 발전은 새로운 개념의 전자기기와의 접목으로 이어지고 있다. 이와 더불어 기존의 디스플레이를 대체할 수 있는 차세대 디스플레이로서 보관과 이동이 용이하고 적용범위가 넓은 유연성 표시장치(Flexible Displa)에 대한 연구가 평판디스플레이와 마찬가지로 Liquid Cr stal Displa (LCD), OLED, electronic Paper (E-paper) 등의 형태로 세분화되어 국내외에서 활발히 진행되고 있다. 이 중 OLED는 자발광형의 표시소자로 시야각과 대조비가 우수하고 저소비전력과 빠른 응답속도, 저렴한 제조비용과 사용 환경이 자유로운 장점을 가지고 있으며, 단일기판상에 제조가 가능하기 때문에 유연성 소자의 제작이 쉽다고 알려져 있다.

특, 평면 디스플레이의 유리기판 대신 pol eth lene terephthalate(PET), pol carbonate(PC), Pol ether sulfonate(PES) 등의 가볍고 유연하며 내열성이 큰 엔지니어링 플라스틱 기판을 유연성 기판에 사용하려는 연구가 활발 이루어지고 있다.[1]

플라스틱 기판을 사용하여 OLED 소자에 적용하기 위해서는 저온공정에서 평탄한 표면의 투명전극이 형성되어야 한다. FPD, 박막형 태양전지, Touch panel 등에 사용되는 투명전도성 산화물(Transparent Conductive Oxide)에는 In_2O_3 , SnO_2 , ZnO 등이 있으며, 이 중 Indium Tin Oxide(ITO)가 가장 널리 알려져 있다. 결정화 온도 이상의 고온에서 증착된 우수한 전기전도성과 가시광 투과특성을 가지는 ITO의 경우 거친 표면거칠기와 낮은 식각특성으로 인해 유연성 표시장치에 적용하기에 어려움이 있다[2]. 따라서, 저온에서 우수한 특성을 가지는 투명전도막 합성 연구가 필요하며, 이에 저온에서 우수한 가시광 투과율과 전기전도도, 예칭 특성 및 낮은 표면거칠기를 가지는 것으로 알려진 비정질 구조의 IZO 박막에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

본 연구에서는 박막 증착 공정 중 플라즈마에 의해 제조되는 박막의 표면 및 기판 손상을 줄이기 위해 저전압 인가가 가능한 RF 중첩형 DC 마그네트론 스퍼터링을 적용하였

다.[3] 인가되는 Power와 저온범위에서의 증착온도, 산소유량비를 조절하여 IZO 박막의 전기적, 광학적 특성, 굽힘에 대한 신뢰성을 조사하였다. 그리고, PC 기판 위에 패터닝된 비정질의 IZO 투명전극을 이용하여 유연성 OLED 소자를 제작하였다.

2. 본 론

2.1 비정질 IZO 박막의 제조

본 연구에서는 In_2O_3 -10wt% ZnO 타겟(400×90mm)을 이용하여 RF 부가형 DC 마그네트론 스퍼터링법으로 150 nm 두께의 IZO 박막을 T-S 거리 80 mm에서 증착하였다. Si-wafer (100), PET, PC, slide glass를 기판으로 사용하였으며, 아세톤-이온교환수-알콜-이온교환수를 바꾸어가며 초음파 세척하였다. 초기진공도를 10^{-5} Torr 이하로 배기하고, 공정진공도는 약 5×10^{-3} Torr로 유지하였다. DC current를 1 A로 고정하고 0 W에서 300 W 범위의 RF power, 그리고 산소 유량비와 기판온도를 변화시켰다.

IZO 박막의 두께는 surface profiler (Tencor, P-11), 전기적 특성은 4-point probe(Loresta-GP, MCP-T600), 광학적 특성은 UV/VIS/NIR Spectrophotometer(Varian, Car 5000)를 이용하여 측정하였다. 표면거칠기 관찰은 AFM(NI, SPA400)을 이용하였으며, 신뢰성 평가를 위해 반복 굽힘에 의한 전기적 변화를 관찰하였다.

표 1. 공정변수와 증착조건
Deposition condition of IZO thin films

Substrate	Si-wafer(100)
DC power	1 A
RF power	0~200 W
Base pressure	$\sim 1.0 \times 10^{-5}$ Torr
Working pressure	$\sim 5 \times 10^{-3}$ Torr
O ₂ flow ratio	0 ~ 1.66 %
Substrate temperature	R.T, $\sim 80^\circ\text{C}$

2.2 유연성 OLED 제작 및 특성평가

DC current 1 A, RF power 200 W를 중첩 인가하여 IZO 투명전극(면저항 $\sim 30 \Omega/\square$)을 shadow 마스크를 이용하여 유연성 PC 기판 위에 가열 없이 증착하여 패터닝된 전극을 형성하였다. 비교 실험을 위하여 결정질 ITO 박막을 Glass 위에 패터닝 (면저항 $\sim 10 \Omega/\square$, Asahiglass Fine Techno co., LTD)된 기판을 사용하였다. 기판 청소를 위해서 투명전극이 패터닝된 샘플을 아세톤과 IPA에서 세척한 후, 10분간 UV-ozone 처리를 하였다. 표면세척을 마친 샘플은 5×10^{-8} Torr 압력 하에서 유기물 증착기를 이용하여 다음 순서에 따라 유기물 박막을 증착하였다. 먼저 40 nm 두께의 NPB와 6 wt.%의 $\text{Ir}(\text{pp})_3$ 가 도핑된 30 nm 두께의 CBP를 정공수송층과 발광층으로 각각 증착하였다. 이후, BCP를 hole blocking층으로 10 nm 두께로 증착시켰으며, 전자수송층으로 Alq₃를 40 nm 두께로 증착하였다. 마지막으로 shadow

마스크를 이용하여 1 nm 두께의 LiF와 100 nm 두께의 Al 을 전자주입층과 cathod층으로 각각 증착하였다. 이때 상온에서 성장시킨 IZO 투명전극의 특성 비교를 위해 현재 OLED 양산에서 사용되는 ITO/glass 기판을 비교 샘플로 정하고 동일한 OLED를 제작하였다.

IZO/PC 기판과 ITO/glass 기판에 각각 제작된 OLED의 전류-전압-휘도 (J-V-L) 특성은 Keithle 2400 programmable source meter와 Newport 818-UV silicon photodiode을 이용하여 측정되었다.

2.3 실험결과 및 고찰

2.3.1 Indium Zinc Oxide 박막의 특성평가

Fig. 1은 기판의 가열 없이 RF power변화에 따라 증착한 IZO 박막의 비저항 변화를 나타내고 있다. DC current가 1 A 인가되었을 때, RF power가 증가됨에 따라 약 $7.3 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 이던 IZO 박막의 비저항은 약 $3.5 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 로 감소하였다. 이 때 증착한 IZO 박막은 XRD 분석결과 Fig. 2에 나타낸 바와 같이 Power 변화에 관계없이 비정질 구조를 보였으며, 0.3 GPa 이하의 낮은 압축응력을 가졌다.

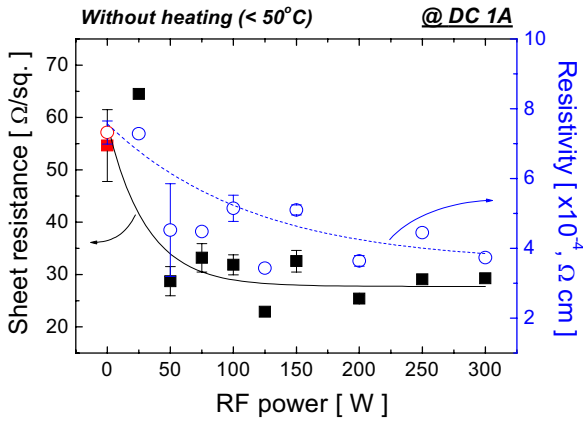


Fig 1. Resistivity of IZO thin films

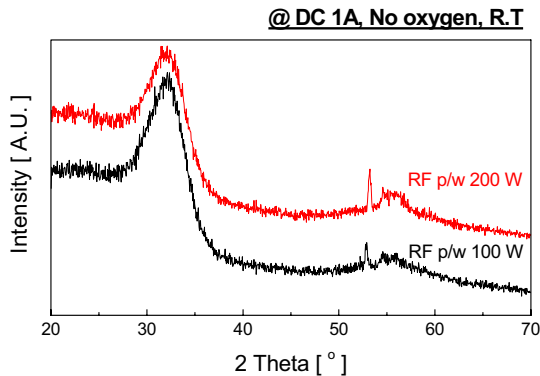


Fig 2. X-ray diffraction Image of IZO thin films without intentionally heating

비가열 (50 °C 이하) 및 가열 (80 °C)시의 산소변화에 따른 전기적 특성은 비가열시 산소를 유입하지 않았을 때 약 $3.5 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$, 가열시 산소유량비가 1%일 때 약 $2.0 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 최저 비저항 값을 가졌다. 광학적 특성은 두 경우 모두 550 nm에서 90 % 이상의 가시광 투과도를 보였다. (비가열시 산소분율 0% : 92 %, 가열시 산소분율 1% : 96 %) 가열 후에도 IZO 박막은 비정질 구조를 보였다.

2.3.2 IZO 및 ITO를 이용한 OLED의 특성평가

PC 기판위에 증착된 비정질 IZO 투명전극 (IZO/PC) 이용한 green 인광 유연성 OLED의 최대양자효율은 $\eta_{\text{ext}}=13.7 \%$ 이며 전력효율은 $\eta_p=32.7 \text{ lm/W}$ 를 보였다. 이는 glass 위에 증착된 결정질 ITO (ITO/glass) 박막이 적용된 OLED ($\eta_{\text{ext}}=12.4 \%$, $\eta_p=30.1 \text{ lm/W}$) 보다 높은 효율이다. [4,5] 비정질 IZO 투명전극의 경우 상온에서 제작되었음에도 불구하고 고온 (~300 °C)에서 제작된 ITO와 높은 양자효율과 전력효율을 나타내었는데 이는 IZO 투명전극이 상온공정이 필수적인 유연성 디스플레이에 적합함을 말해준다. Fig. 3은 유연성 IZO/PC 투명전극 상에 제작한 OLED의 휘어진 모습과 휘어진 상태에서 발광 하는 모습을 나타낸 사진이다.



Fig 3. Green phosphorescent OLED using a-IZO

3. 결 론

RF 증착형 DC 마그네트로 스퍼터링을 이용한 저온공정을 통해 비정질 IZO 박막을 증착하였다. IZO 박막의 전기적, 광학적 특성은 기판을 가열하지 않은 경우 약 $3.5 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 비저항과 92%의 가시광 투과도, 80°C의 기판가열과 산소분압을 조절하였을 경우 $2.0 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 비저항, 96%의 가시광 투과도를 나타냈다. 본 연구의 IZO 공정조건을 적용하여, 비가열의 PC 기판위에 IZO 박막을 증착한 경우와 결정질의 ITO 박막을 적용한 경우의 OLED 특성을 비교분석하였다. 그 결과 IZO 박막을 이용한 OLED 소자가 최대 외부양자효율 $\eta_{\text{ext}}=13.7 \%$ 와 전력효율 $\eta_p=32.7 \text{ lm/W}$ 로 ITO 박막을 적용한 경우($\eta_{\text{ext}}=12.4 \%$, $\eta_p=30.1 \text{ lm/W}$)보다 조금 더 높은 효율을 나타냈다. 본 연구를 통해 저온공정을 통해 우수한 IZO 박막을 증착할 수 있었으며, OLED의 효율평가 결과로부터 유연성 기판의 anode로서 매우 적합함을 확인할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] K. Noda, H. Sato, H. Ita a, and M. Yamada, "Characterization of Sn-doped In₂O₃ film roll-to-roll flexible plastic substrate prepared b DC magnetron sputtering" *J n. J. a l. Phys.* **42**, 1 (2003)
- [2] H. Morikawa, M. Fujita, "Cr stallization and decrease in resistiyit on heat treatment of amorphous indium tin oxide thin films prepared b d.c. magnetron sputtering" *Thin Solid Films* **339**, 309 (1999)
- [3] S. Ishibashi, K. Nakamura, Y. Jiguchi, T. Komatsu, Y. Murata and Y. Ota, *U.S. Patent* **5**, 180, 476 (1993)
- [4] T.Tsutsui, M.-J. Yang, M. Yahiro, K. Nakamura, T. Watanabe, T.Tsuji, Y. Fukuda, T. Wakimoto, S. Mi aguchi, *J n. J. A l. Phys.* **38**, L1502 (1999)
- [5] H.J. Peng, X.L. Zhu, J.X. Sun, X.M. Yu, M. Wong, H.S. Kwok, *A l. Phys. pett.* **88**, 033509(2006)