

대향타겟식 스퍼터링법을 이용한 TOLED용 ITO 박막의 산소 가스 의존성

Dependence on the Oxygen Gas of ITO Thin Film for TOLED by Facing Targets Sputtering Method

금민중¹, 김경환^{1,a}

(Min-Jong Keum¹ and Kyung-Hwan Kim^{1,a})

Abstract

In case of preparation of ITO thin film for using top electrode of Top-emitting Organic Light Emitting Diodes(TOLEDs), the ITO thin film should be prepared at room temperature and low oxygen gas flow condition in order to reduced the damage of organic layer due to the bombardment of highly energetic particles such as negative oxygen ions which accrued from the plasma. In this study, the ITO thin film with high optical transmittance and low resistivity prepared as a function of oxygen gas (0 ~ 0.8 sccm) and Ar gas was fixed at 20 sccm by the Facing Targets Sputtering (FTS) method. The electrical and optical properties of ITO thin films were measured by Hall effect measurement, UV/VIS spectrometer, respectively. In the results, we obtained the ITO thin film with lowest resistivity($3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$) at oxygen gas flow 0.2 sccm and optical transmittance over 80 % at oxygen gas flow over 0.2 sccm.

Key Words : TOLED, ITO cathode, FTS

1. 서 론

1987년 Eastmann Kodak의 Tang[1]에 의해 정공 수송층(Hole Transport Layer : HTL)과 발광층(Emitting Layer : EML)구조의 OLED소자가 본격적으로 개발되기 시작한 이후 현재에는 소자의 발광 효율 및 대형화 및 대량 생산에 관해 많은 연구가 이뤄지고 있다[2,3]. 음전극(상부)/유기물/양전극(하부)의 구조를 갖는 OLED 소자의 대형화 및 대량생산을 위해서는 스퍼터링법을 이용하여 상부 및 하부 전극을 제작하는 것이 가장 적합한 방법으로 대두되고 있으며 특히 최근에는 전면 발광용 유기발광소자(Top-emitting Organic Light

Emitting Diodes : TOLEDs)의 상부 투명 전극에 대한 제작 또한 스퍼터링법을 적용하는 연구가 시도되고 있다[4-8]. 그러나 스퍼터링법을 이용하여 OLED용 상부 투명 전극을 제작하는 경우, 기존의 스퍼터링법은 기본적으로 타겟과 기판이 서로 마주 보고 있는 구조이기 때문에 상부 투명 전극 제작 시 플라즈마 형성 시 발생하는 γ -전자나 반발 Ar(중성) 입자 그리고 산소 음이온 등의 기판 충돌로 인한 유기물의 손상을 피할 수 없다. 특히 상부 투명전극의 대표적인 ITO 박막 제작의 경우 유입되는 산소 가스의 양에 따라 투명전극의 전기적·광학적 특성이 크게 영향을 받기 때문에 γ -전자나 반발 Ar(중성) 입자 등의 유기물 손상을 해결보다 우선적으로 적은 산소 가스량으로 우수한 전기적·광학적 특성을 갖는 상부 투명전극인 ITO 박막을 제작할 수 있는 기술 개발이 요구된다. 따라서 본 연구에서는 플라즈마 생성 영역과 박막 증착 영역이 완전히 분리된 상태에서 박막을

1. 경원대학교 전기공학과

(경기도 성남시 수정구 복정동 산65)

a. Corresponding Author : khkim@kyungwon.ac.kr

접수일자 : 2005. 9. 23

1차 심사 : 2005. 11. 7

심사완료 : 2005. 11. 23

증착하며, 기판은 플라즈마에 노출되지 않고 유기 층이나 그 위에 증착되는 막이 높은 에너지 입자에 의해 손상을 받는 확률이 적은 상태에서 박막 증착이 가능한 대향 타겟식 스퍼터링법을[9-11] 사용하여 TOLED용 상부 투명 전극인 ITO 박막을 증착하였으며 산소 가스량에 따른 ITO 박막의 전기적·광학적 특성 변화에 대해 연구하였다.

2. 실험

2.1 실험장치

본 실험에서는 그림 1과 같은 구조의 FTS [Facing Targets Sputtering] 장치를 사용하였다. 대향 타겟식 스퍼터링 장치는 두 개의 타겟이 마주 보고 있으며 타겟의 뒷면에는 영구 자석이 부착되어 플라즈마로부터 생성되어지는 음이온을 플라즈마 내에 구속시키게 된다. 또한 기판은 플라즈마로부터 이격되어지는 타겟간 중앙부에 위치하여 plasma-free에 위치하게 되므로, 스퍼터링이 일어날 때 발생하는 산소 음이온에 의한 박막의 손상을 최소화 시킬 수 있다.

본 실험에서는 아르곤과 산소의 혼합가스 [Ar:O₂=20:(0~0.8) sccm] 분위기하에서 ITO 박막을 제작하였다. 기판으로는 Corning-glass 기판을 사용하였으며, 모든 샘플의 기판 온도는 실온, ITO 박막의 두께는 100 nm, 타겟간 거리(D_{T-T})는 100 mm로 고정하였다. 자세한 증착 조건은 표 1에 나타내었다.

UV/VIS-Spectrometer(HP)를 사용하여 ITO 박

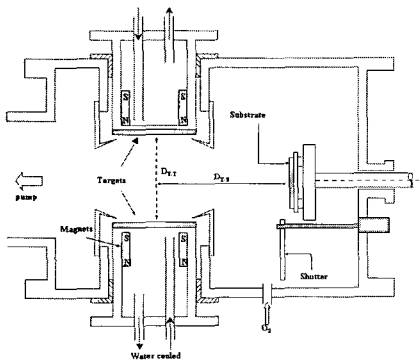


그림 1. 대향타겟식 스퍼터링 장치 개략도.
Fig. 1. Schematic diagram of facing targets sputtering apparatus.

표 1. 스퍼터링 조건.

Table 1. Sputtering conditions.

Parameters	Conditions
Targets	ITO(In ₂ O ₃ -SnO ₂ :10 %)
Working gas	Ar, O ₂
Background pressure	2×10 ⁻⁶ Torr
Working pressure	1 mTorr
Ar : O ₂	20 : 0~1.0 sccm
Sputtering current	0.2, 0.4, 0.6 A

막의 광학적 특성을 살펴보았으며, 제작된 ITO박막의 비저항은 Four point probe(Chang-Min)와 Hall effect measurement system(EGK)을 병행하여 사용하였으며 이동도(μ)와 R_H(Hall coefficient)는 Hall effect measurement(EGK)로 측정하였다. 캐리어 농도는 상기 장비를 사용, 측정된 R_H를 다음 식에 적용하여 계산하였다.

$$N = \frac{1}{qR_H} \quad (1)$$

(q : 전하량, N : 캐리어 농도)

3. 결과 및 고찰

그림 2는 투입 전류에 따른 방전 특성을 나타낸 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 투입 전류 증가에 따라 방전 전압이 증가하는 것을 볼 수 있으며, 가스 압력 증가에 따라 방전 전압은 감소함을 볼 수 있다. 낮은 방전 전압은 유기물 상에 투명전극 제작 시 증착에 관여하는 입자들의 에너지를 직접적으로 감소시킬 수 있는 방법이기 때문에 가급적 낮은 방전 전압 조건에서 고품질의 ITO 박막을 제작하여야만 한다. 그림 3은 산소 가스 유입량에 따른 ITO박막의 증착을 변화를 나타낸 것이다. 그림에 나타난 바와 같이 ITO 박막의 증착율은 산소 가스의 유입량 변화에 대해 큰 차이를 보이지 않았지만 투입전류 증가에 따라 증착율 또한 비례하여 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 Ar 가스의 양은 고정되어(20 sccm) 있는 상태에서 미량의 산소 가스 유입이 증착율에 큰 영향을 주지 못하기 때문이다.

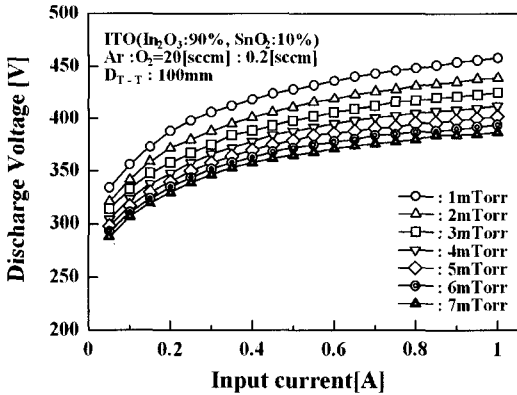


그림 2. 투입 전류에 따른 방전 특성.
Fig. 2. Discharge properties with Input current.

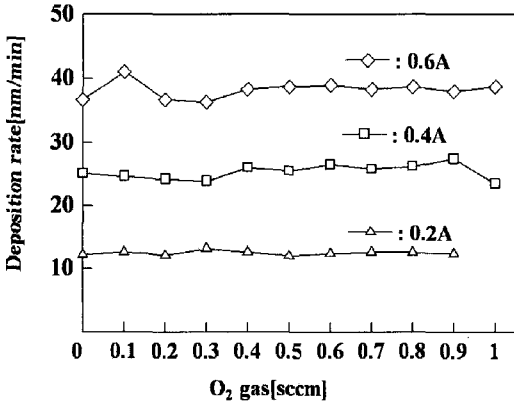


그림 3. 산소 가스량에 따른 ITO 박막의 증착율.
Fig. 3. Deposition rate of ITO thin films as a function of oxygen gas.

그림 4는 투입전류 0.4 A에서 산소 유입량에 따른 ITO박막의 전기적 특성을 나타낸 그림이다. Ar 가스 유입량은 20 sccm으로 고정한 상태에서 산소 유입량이 0.1 sccm에서 0.2 sccm까지 증가함에 따라 ITO 박막의 비저항은 캐리어의 이동도 증가와 함께 감소함을 알 수 있었다. 이는 산소 가스 유입량이 0.2 sccm 까지 증가함에 따라 증착되는 ITO 박막 내의 산소 결핍을 감소시킴으로서 이동도는 증가하고 증가된 이동도가 비저항의 감소 원인이 되는 것이다. 또한 산소 가스 유입량 0.2 sccm 이상의 조건에서 제작된 ITO 박막의 경우에는 캐리어의 이동도 변화가 거의 없으며 캐리어 농도가 약간씩 감소함에 따라 비저항이 증가하는 것을 볼

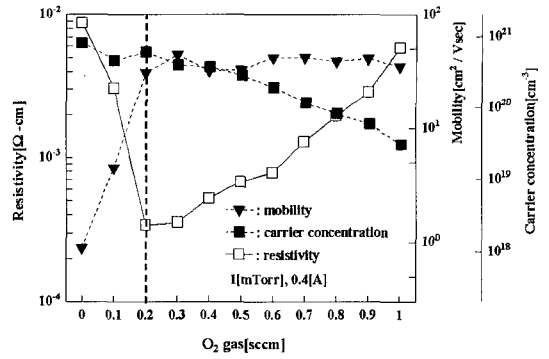


그림 4. 산소 가스량에 따른 ITO 박막의 전기적 특성.
Fig. 4. Electrical properties of ITO thin films with oxygen gas.

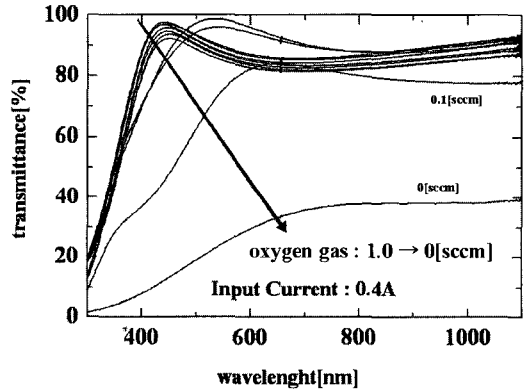


그림 5. 산소 가스량에 따른 ITO 박막의 광투과도.
Fig. 5. Transmittance of ITO thin films with oxygen gas.

수 있다. 이는 산소 유입량이 0.2 sccm을 넘으면서 산소 결핍을 보충하고 남은 파잉의 산소가 도너 역할을 하는 산소 공공까지 치환하여 산소 공공의 감소로 인한 비저항이 증가하는 것으로 생각된다[12]. 그러나 산소 유입량이 1 sccm까지 증가하여도 $10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 대의 양호한 비저항을 유지하는 것을 알 수 있으며 본 실험에서는 산소 가스 유입량이 0.2 sccm에서 전기적 특성의 전이 영역을 확인할 수 있었다.

제작된 ITO 박막의 결정학적 특성을 알아보기 위해 XRD를 이용하여 회절 피크를 측정하였으나 상기 어떠한 조건에서도 피크가 나타나지 않는 비결정질임을 확인하였다. 이는 제작된 박막의 두께

가 100 nm정도로 매우 얇기 때문일 것으로 생각되며, 추후 기판 온도를 올린다면 결정학적 특징을 살펴 볼 수 있을 것으로 사료된다. 그림 5는 투입 전류 0.4 A, 산소 가스 유입량 변화(0~1.0 sccm)에 따라 제작된 ITO박막의 광투과율을 나타낸 그림이다. 그림에 나타난 바와 같이 순수 Ar 가스만을 사용한 경우의 광투과율은 40 % 정도이지만 0.1 sccm의 미량의 산소 가스 유입만으로도 투과도는 60 %이상 향상되며 산소 가스 유입량이 0.2 sccm부터는 투명 전도막으로서 응용 가능한 80 % 이상의 투과도를 갖는 박막을 제작 할 수 있었다.

4. 결 론

본 연구에서는 산소 음이온 등의 고에너지 입자들의 기판 충돌을 감소시키기 위해 최소의 산소 가스량 변화에 따라 ITO 박막을 제작하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 실온에서 아주 작은 산소 유입량인 산소 0.2 sccm의 유입으로도 $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 의 우수한 비저항을 갖는 박막을 제작할 수 있었으며, 산소 가스 유입량 0.2 sccm 이상의 조건에서 제작된 모든 ITO 박막의 광투과율은 80 % 이상을 갖는 박막을 제작 할 수 있었다. 따라서 스퍼터링법을 이용하여 OLED와 같은 유기물을 이용한 디스플레이 또는 OTFT 분야의 상부 투명 전극을 제작하는 경우에는 유입되는 산소 가스의 양이 많을수록 유기물과의 결합이나 플라즈마로부터 발생하는 높은 에너지를 갖는 산소 음이온 등의 기판 충돌로 인한 유기물 손상의 확률을 충분히 낮출 수가 있을 것으로 생각되며 가급적 적은 산소 가스 유입량과 실온 제작이 요구되는 공정에서는 대향타겟식 스퍼터링법이 매우 적합한 공정법인 것으로 사료된다.

참고 문헌

[1] C. W. Tang and S. Al. Vanslyke, "Organic electroluminescent diodes", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, No. 12, p. 913, 1987.
 [2] Y. Yang and A. H. Heeger, "Polyaniline as a transparent electrode for polymer light-emitting diodes with polyethylene dioxythiophene-

polystyrene sulfonate as the transparent anode", Synth. Metals, Vol. 87, p. 171, 1997.
 [3] S. A. Carter, M. Angelopoulos, S. Karg, P. J. Brock, and J. C. scott, "Polymeric anodes for improved polymer light-emitting diode performance", Appl. Phys. Lett., Vol. 70, No. 16, p. 2067, 1997.
 [4] 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, Vol. 445, p. 245, 2003.
 [5] K. Ishibashi, K. Hirata, and N. Hosokawa, "Mass spectrometric ion analysis in the sputtering of oxide targets", J. Vac. Sci. Technol A., Vol. 10, No. 4, p. 1719, 1992.
 [6] K. Tominaga, T. Ueda, T. Ao, A. Katkoka, and I. Mori, "ITO films prepared by facing target sputtering system", Thin Solid Films, Vol. 281-282, No. 1-2, p. 194, 1996.
 [7] 김건희, 금민중, 김한기, 손인환, 장경욱, 이원재, 최형욱, 박용서, 김경환, "FTS법을 이용한 ITO 박막의 제작", 전기전자재료학회논문지, 17권, 11호, p. 1230, 2004.
 [8] 추혜용, "Flexible OLED 기술 동향", 전기전자재료학회지, 17권, 8호, p. 13, 2004.
 [9] 금민중, 김경환, "대향타겟스퍼터링법에 의한 FBAR용 AZO(ZnO:Al) 박막의 제작", 전기전자재료학회논문지, 17권, 4호, p. 442, 2004.
 [10] 금민중, 손인환, 최명규, 추순남, 최형욱, 신영화, 김경환, "FBAR용 ZnO/SiO₂/Si 박막의 결정학적 특성에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 16권, 8호 p. 711, 2003.
 [11] 김경환, 손인환, 금민중, "대향타겟식 스퍼터링에 의한 Co-Cr 박막의 제작", 전기전자재료학회논문지, 11권, 5호, p. 418, 1998.
 [12] M. Bender, W. Seeling, C. Daube, H. Frankenberger, B. Ocker, and J. Stollenwerk, "Dependence of oxygen flow on optical and electrical properties of DC-magnetron sputtering ITO films", Thin Solid Films, Vol. 326, p. 72, 1998.