

## PET 기판 위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 증착에 따른 ITO 박막의 부착 및 전기적 광학적 특성 연구

강자연<sup>a</sup>, 김동원<sup>a\*</sup>, 조규일<sup>a</sup>, 우병일<sup>a</sup>, 윤환준<sup>b</sup>

<sup>a</sup>경기대학교 재료공학과, <sup>b</sup>(주)삼한일렉트로닉스

### A Study on Adhesion and Electro-optical Properties of ITO Films Deposited on Flexible PET Substrates with Deposition of SiO<sub>2</sub> Buffer Layers

Ja-youn Kang<sup>a</sup>, Dong-won Kim<sup>a\*</sup>, Kyu-il Cho<sup>a</sup>, Byung-il Woo<sup>a</sup>, Hwan-jun Yun<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Department of Advanced Materials Engineering, Kyonggi University, 94-6, Yui-dong, Yeongtong-gu, Suwon-si, Gyeonggi-do, 443-760, Korea

<sup>b</sup>Samhan Electronics, 401-1, Yeongcheon-ri, Dongtan-myeon, Hwaseong-si, Gyeonggi-do, Korea

(Received February 9, 2009 ; revised February 26, 2009 ; accepted February 27, 2009)

#### Abstract

Using an evaporation system, SiO<sub>2</sub> was deposited as a buffer layer between a PET substrate and a ITO layer and then ITO/SiO<sub>2</sub>/PET layers were annealed for 1.5 hours at the temperature of 180°C. Adhesion and electro-optical properties of ITO films were studied with thickness variance of a SiO<sub>2</sub> buffer layer. As a result of introduction of the SiO<sub>2</sub> buffer layer, sheet resistance and resistivity increased and a ITO film with optimum sheet resistance (529.3 Ω/square) for an upper ITO film of resistive type touch panel could be obtained when SiO<sub>2</sub> of 50 Å was deposited. And it was found that ITO films with SiO<sub>2</sub> buffer layer have higher transmittance of 88~90% at 550 nm wavelength than ITO films with no buffer layers and the transmittance was enhanced as SiO<sub>2</sub> thickness increased from 50 Å to 100 Å. Adhesion property of ITO films with SiO<sub>2</sub> buffer layers became better than ITO films with no buffer layers and this property was independent of SiO<sub>2</sub> thickness variance (50~100 Å). By depositing a SiO<sub>2</sub> buffer layer of 50 Å on the PET substrate and sputtering a ITO thin film on the layer, a ITO film with enhanced adhesion, electro-optical properties could be obtained.

*Keywords: ITO(Indium-Tin-Oxide), PET, SiO<sub>2</sub> buffer layer, Adhesion, Touch screen*

## 1. 서 론

ITO(Indium-Tin-Oxide)는 n-type 전도 특성을 갖는 산화물 반도체로서 가시광 영역에서의 높은 광투과율 및 낮은 전기 비저항을 나타내기 때문에 태양전지(solar cell), 액정디스플레이(liquid crystal display), 터치패널(touch panel) 등의 투명전극 재료, 전계발광(electro-luminescent) 소자, 표면발열체, 열반사 재료 등 다양한 분야에 응용되고 있다<sup>1)</sup>.

이들 분야에서 대부분 기판으로 사용하고 있는 유리의 경우 파손의 우려와 유연성, 기판 두께 등에 제한이 있으므로 이러한 문제점들을 해결하기 위해 최근 acryl, polycarbonate(PC), polypropylene(PP), polyethylene terephthalate(PET), polyethersulfon(PES) 등과 같은 투명 플라스틱 기판 위에 ITO 박막을 증착하는 기술에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다<sup>2-6)</sup>.

ITO 박막의 전기, 광학적 특성이 기기 성능에 직접적으로 영향을 미치지만, 박막의 내구성과 장기간 신뢰성은 박막과 그 하부 기판 사이의 부착성에

\*Corresponding author. E-mail : dwkim@kyonggi.ac.kr

크게 의존하는 것으로<sup>7,9)</sup> 부착 불량은 ITO 박막 표면에 원하지 않는 hillock, hole 등의 생성 원인이 되어 박막의 비저항 및 광학적 특성을 변화시키는 간접적인 원인이 된다<sup>10)</sup>.

본 연구에서는 터치패널의 전극으로 사용되는 ITO 박막의 전기, 광학적 특성을 저하시키지 않고, 내구성을 향상시키기 위하여 PET 기판과 ITO 박막 사이에 버퍼층을 도입하였다. 이러한 버퍼층의 도입 연구는 기존에 있어 왔으나, SiO<sub>2</sub>를 버퍼층으로 도입한 연구는 그동안 시도되지 않았었다. 따라서 본 연구에서는 evaporation system을 이용하여 PET 기판 위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 증착하고, 그 위에 DC 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 ITO 박막을 증착한 후 진공에서 열처리함으로써 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따른 ITO 박막의 전기적, 광학적, 부착 특성 변화를 조사하고, 그 원인을 분석하였다.

## 2. 실험방법

본 연구에서는 PET 기판 위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 열 증착하기 위한 장비로 evaporation system을 이용하였고, 증발 물질로는 크기 2~3 mm, 순도 99.99%, 과립상 SiO<sub>2</sub>를 이용하였다. PET 기판은 크기가 190×250 mm로, 초음파 세척기에서 acetone 10분, alcohol 10분 및 증류수에 10분 세척 후 증류수에 보관하였다가 evaporator에 들어가기 직전 질소 건으로 건조시킨 다음 열 증착을 실시하였다.

열 증착을 위한 공정 조건은 표 1에서 나타낸 바와 같이 evaporator 챔버내 진공도는 저진공용 로타리 펌프를 이용 1.3×10<sup>-3</sup> Torr까지 진공을 형성한 후, 부스터 펌프와 고진공용 오일확산 펌프를 이용하여 3.0×10<sup>-5</sup> Torr로 기본 진공도를 유지하였고, 증착 전에 시편에 묻어 있을 수 있는 유기물의 제거 및 증착시에 재료와 시편 간의 부착력 향상을 위해 Ar 15 sccm, O<sub>2</sub> 25 sccm을 주입하여 기판에 이온빔 처리를 실시하였다. SiO<sub>2</sub> 열 증착시에는 증착 공정별 박막의 두께를 제어할 수 있는 Inficon사

Table 1. Process conditions of evaporation

Parameters	Process conditions
Materials	SiO <sub>2</sub> granule type
Base Pressure	3.0×10 <sup>-5</sup> Torr
Working Pressure	4.5×10 <sup>-5</sup> Torr
Gas	Ar 15 sccm, O <sub>2</sub> 25 sccm
Temperature	150 °C
Deposition rate	2 Å/s
Deposition thickness	50 Å, 100 Å

의 deposition controller(IC/5)를 이용하여 SiO<sub>2</sub>의 증착율이 2 Å/s가 되도록 유지하였고, 이 값을 바탕으로 두께가 50 Å, 100 Å이 되도록 증착 시간을 조절하여 열 증착하였다.

PET 기판 위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 증착 후 스퍼터링법으로 ITO 박막을 증착하였다. 본 연구에서 사용한 장비는 양산용 DC 마그네트론 스퍼터로써 로타리 펌프와 크라이오 펌프가 부착된 시스템으로 구성되어 있으며 DC 파워를 공급하기 위해 2.2 kW 직류 발생기를 사용하여 플라즈마를 형성시켰다. ITO 타겟은 산화인듐(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)에 산화주석(SnO<sub>2</sub>)이 10 wt% 함유된 산화물로 166×380 mm의 크기를 가지며 시편과 약 60 mm 정도 떨어진 거리에 위치시켰다.

ITO 박막 증착을 위해 SiO<sub>2</sub>가 증착된 PET 기판을 스퍼터의 16각형 지그(jig)의 한쪽 면에 자석을 이용하여 고정시키고, 증착시 지그가 5.22 Hz의 속도로 회전하도록 설정하여 ITO 박막의 증착율이 30 Å/s이 되도록 유지하였다. ITO 스퍼터 증착 공정 조건은 표 2에 나타낸 바와 같이 기본 진공은 2.5×10<sup>-5</sup> Torr로 하였고, 증착시 가스 조성은 O<sub>2</sub>/(Ar+O<sub>2</sub>) 비율이 2%가 되도록 하였으며, 증착 압력은 2.5×10<sup>-3</sup> Torr로 유지하며 상온에서 약 150 Å 두께로 증착하였다.

ITO/SiO<sub>2</sub>/PET 구조로 증착된 시편들의 동일한 위치를 20×35 mm 크기로 재단한 후 진공 소결로를 이용하여 열처리를 실시하였다. 열처리를 위해 1.0×10<sup>-3</sup> Torr까지 진공을 형성한 후 질소가스를 주입하여 1.0×10<sup>-1</sup> Torr의 진공도를 유지하였고, 그림 1의 공정과 같이 승온 속도 5 °C/min, 온도 180 °C에서 90분 동안 열처리 한 후 냉각하였다.

ITO 박막과 기판의 부착 특성 분석을 위해 scratch test(scratch tester; CSM-instruments, SB-A64)와 water boiling test를 실시하였고, ITO 박막의 전기

Table 2. Process conditions of DC magnetron sputtering

Parameters	Process conditions
Target	ITO; In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (90%)-SnO <sub>2</sub> (10%)
Substrate	Polyethylene terephthalate (PET)
Base pressure	2.5×10 <sup>-5</sup> Torr
Working pressure	2.5×10 <sup>-3</sup> Torr
Deposition gas	O <sub>2</sub> /(Ar+O <sub>2</sub> ) 2%
Presputter	5 min
DC power	2.0 kW
Jig Rotation Speed	5.22 Hz
Substrate temperature	Room Temperature
Distance	60 mm
Thickness	about 150 Å

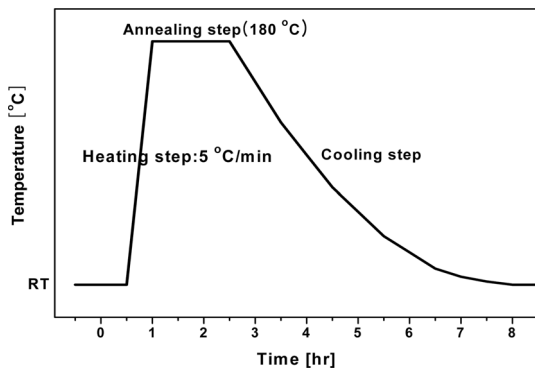


Fig. 1. diagram of annealing process.

적 특성 분석을 위해 면저항(four-point probe; Chang min tech, CMT-SR1000N), 캐리어 농도 및 이동도(hall effect measurement system; Accent, HL5500)를 측정하였다. 또한 시편의 광학적 특성 분석을 위해 550 nm 가시광 영역에서 투과율(UV-VIS spectrophotometer; Uvikon, 941plus)을 측정하였고, 주사전자현미경(FE-SEM; Jeol, JSM-6500F)을 이용하여 박막 표면의 형상을 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

PET 기판에 열 증착법을 이용하여 SiO<sub>2</sub>를 각각 0 Å, 50 Å, 100 Å 증착하고, 그 위에 DC 마그네트론 스퍼터링법을 이용하여 ITO를 약 150 Å 정도씩 각각 증착한 후 열처리를 진행함으로써, 버퍼층인 SiO<sub>2</sub>의 두께에 따른 ITO 박막의 전기적, 광학적, 부착 특성의 변화를 알아보았다.

ITO 박막의 전기적 특성 변화를 알아보기 위하여 four-point probe를 이용하여 면저항을 측정해 본 결과, 그림 2와 같이 SiO<sub>2</sub> 버퍼층의 두께가 0 Å, 50 Å, 100 Å으로 커짐에 따라 면저항도 각각 188.9 Ω/square, 529.3 Ω/square, 602.3 Ω/square로 값이 커짐

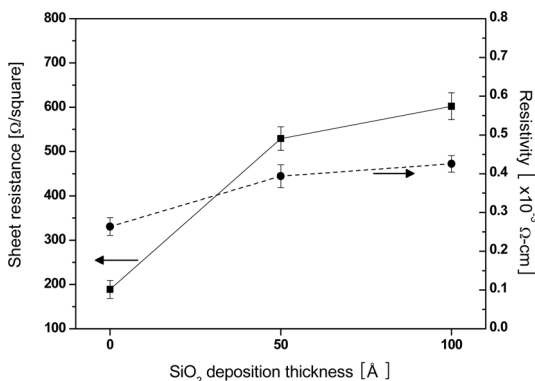


Fig. 2. Sheet resistance and resistivity of ITO films with thickness of SiO<sub>2</sub> buffer layers deposited on the PET substrates.

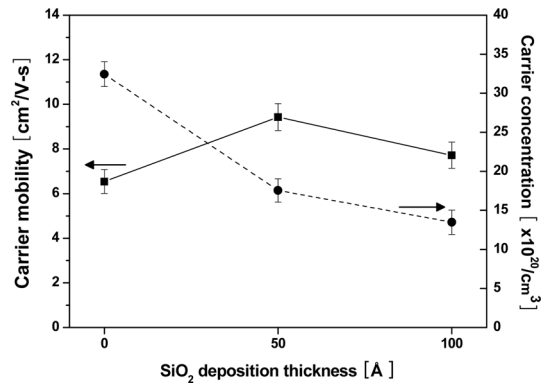


Fig. 3. Carrier mobility and concentration of ITO films with thickness of SiO<sub>2</sub> buffer layers deposited on the PET substrates.

을 알 수 있었고, 특히 SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 도입된 후 면저항 값의 큰 증가를 관찰할 수 있었다. 이것은 SiO<sub>2</sub> 두께에 따른 비저항 값의 변화와도 일치하는 결과로, 이러한 결과의 원인을 알아보기 위해 Hall effect measurement system을 이용하여 캐리어 이동도 및 농도를 측정하였다. 그림 3에 나타난 바와 같이 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 50 Å, 100 Å 도입했을 때 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입하지 않았을 때보다 캐리어 이동도는 약간 높아졌으나 캐리어 농도는 상대적으로 크게 낮아졌는데, 전자의 경우 SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 PET로부터 ITO쪽으로 불순물의 유입을 막아 ITO 내부의 캐리어 이동도가 향상된 것으로 보이며, 후자의 경우 ITO 스퍼터링시 기판 온도 상승으로 ITO 박막의 미세한 결정화 거동에 따라 첨가원소 Sn에 의한 캐리어 전자밀도 증가 현상이 일어나는데, SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 기판 온도 상승을 막아 캐리어 농도가 낮아진 것으로 판단된다.

SiO<sub>2</sub> 버퍼층 두께에 따른 ITO 박막의 광학적 특성 변화를 알아보기 위해 UV-VIS spectrophotometer

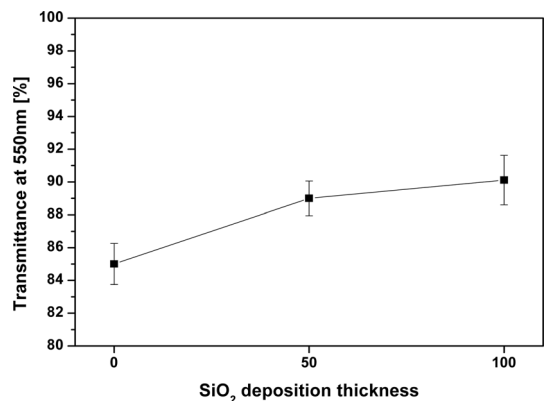


Fig. 4. Transmittance at 550 nm wavelength of ITO/SiO<sub>2</sub>/PET layers with thickness of SiO<sub>2</sub> buffer layers.

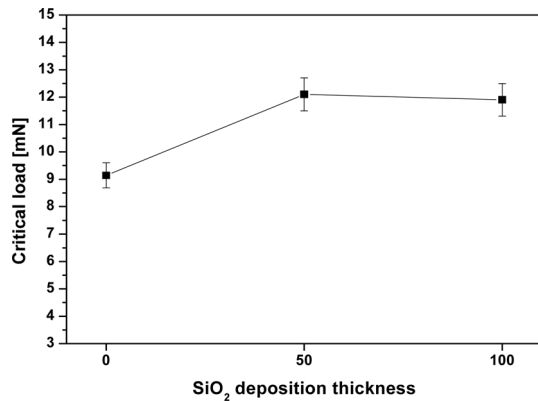


Fig. 5. Critical load of ITO films with thickness of SiO<sub>2</sub> buffer layers deposited on the PET substrates.

를 이용하여 가시광 영역 중 550 nm 파장에서의 투과율을 측정하였고, 그 결과를 그림 4에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입하지 않은 시편에 비하여 도입한 시편의 광투과율이 3~5% 더 향상되었고, 특히 버퍼층의 두께가 증가할수록 광투과율이 높아졌다. 일반적으로 광투과율을 향상시키기 위해서는 시편의 반사율을 낮추는 것이 중요한데, SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 도입된 시편의 경우 그 위의 ITO 박막과 함께 빛에 대한 간섭현상을 일으켜 기관에 대한 반사율을 낮추어 투과율을 향상시킨 것으로 판단된다<sup>11)</sup>.

SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따른 PET 기관과 ITO 박막 사이의 부착 특성 변화를 알아보기 위해 scratch test와 water boiling test(WBT)를 실시하였다. 그림 5에 나타낸 것은 scratch test 결과로, critical load (Lc) 값은 nano indentor가 load를 높여가며 시편을 긁어나갈 때 시편에 눈에 띄는 박리가 일어난 시점의 load 값을 말하며, 그 값이 높을수록 부착성이 높다고 유추할 수 있다. SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 0 Å, 50 Å, 100 Å 증착하였을 때 critical load 값은 각각 9.14 mN, 12.2 mN, 11.9 mN을 나타냈으며, ITO층이 매우 박막(약 150 Å)인 관계로 측정된 값이 매우 작아 수치상의 비교는 어려울 수 있으나, SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 도입됨에 따라 부착 특성이 향상되었고, 이러한 부착 특성은 버퍼층의 두께와는 상관이 없는 것으로 판단된다.

시편의 부착 특성에 대한 변화를 알아보기 위하여 water boiling test(WBT)를 실시하였고, 그 결과를 그림 6에 나타내었다. WBT는 끓는 물에 시편을 담가 1~2시간 정도 끓인 후 스카치 테이프를 붙였다 떼어 시편에 남아있는 막의 잔류량으로 박막의 부착 특성을 측정하는 것으로 일반적인 부착 테스트로는 측정이 어려운 미세 박막의 시편을 보다 극한의 환경 하에 노출시켜 접착력을 측정하는 방

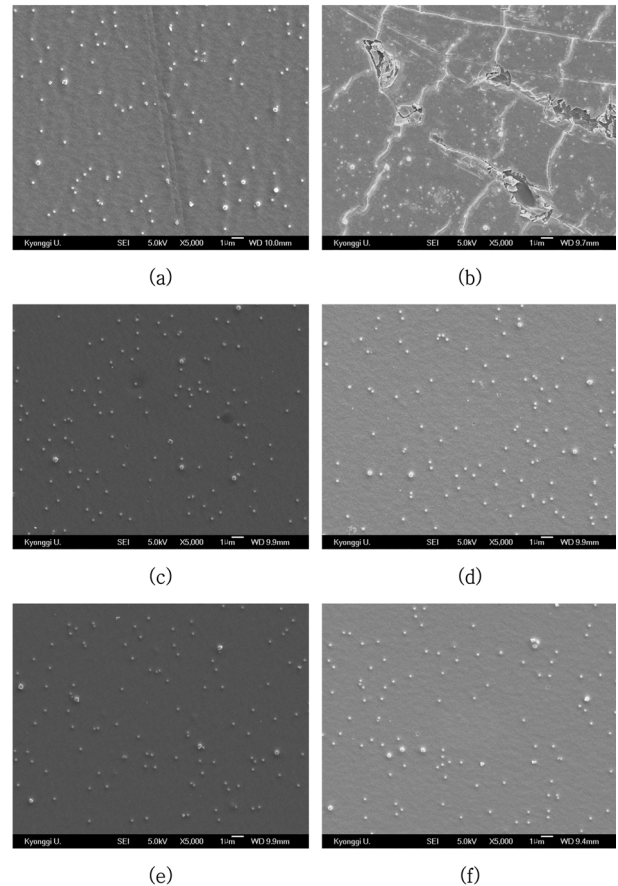


Fig. 6. SEM images before and after WBT(water boiling test) of ITO films with thickness of SiO<sub>2</sub> buffer layers deposited on the PET substrates: (a) ITO/PET before WBT, (b) ITO/PET after WBT, (c) ITO/SiO<sub>2</sub>50 Å/PET before WBT, (d) ITO/SiO<sub>2</sub>50 Å/PET after WBT, (e) ITO/SiO<sub>2</sub>100 Å/PET before WBT, (f) ITO/SiO<sub>2</sub>100 Å/PET after WBT.

법이다. 그림 6의 (a), (c), (e)는 각각 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 0 Å, 50 Å, 100 Å 위에 증착된 ITO 층의 표면 형상을 나타낸 것이고, (b), (d), (f)는 (a), (c), (e)의 시편 각각을 WBT 실시한 후의 ITO 층의 표면 모습을 나타낸 것이다. 그림을 보면 알 수 있듯이 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 증착 두께에 상관없이 ITO 증착 시편마다 작은 돌기들을 관찰할 수 있는데, 이것은 양산용 스퍼터로 증착함으로써 과도한 전류가 지속적으로 인가되어 발생된 결함으로 판단되며 원인으로는 기관의 표면 단차에 따른 하전의 국소적 집중화 및 높은 에너지를 지니는 입자의 충돌로 유도된 입자 조대화 현상 등을 생각할 수 있다<sup>12)</sup>. 또한 그림 6(b)에서 알 수 있듯이 SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 증착되지 않은 ITO 박막의 경우 WBT 후 표면에 전체적으로 균열이 발생하고 눈에 띄게 박리된 부분이 존재하였으나, SiO<sub>2</sub> 버퍼층이 각각 50 Å, 100 Å 증착된 ITO 박막의 경우 6(d), 6(f)에서 관찰할 수 있듯이 WBT

전/후의 표면에 별다른 변화를 보이지 않았다. 이러한 결과를 볼 때 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입하는 것이 PET 기판과 ITO 박막 사이의 부착력을 향상시키며, 부착 특성은 버퍼층의 두께와는 상관이 없는 것으로 판단된다.

PET 기판과 ITO 박막 사이에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입함에 따라 ITO 박막의 면저항 및 비저항은 증가하였으나, SiO<sub>2</sub> 버퍼층 50 Å 증착시 529.3 Ω/square의 면저항 값을 보여 저항막 방식의 터치패널 상층 ITO 필름에 요구되는 면저항 500±100 Ω/square을 만족시킬 수 있었다. 또한 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 두께가 0 Å에서 100 Å으로 증가함에 따라 550 nm 파장에서의 광학적 특성은 향상되었으며, SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따라 PET 기판과 ITO 박막 사이의 부착력은 증가하였고, 이러한 부착 특성은 버퍼층의 두께와는 상관 없는 것으로 나타났다. 차세대 디스플레이의 선두주자인 터치패널에 요구되는 ITO 박막의 특성을 관찰한 결과 본 연구에서 제조된 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입한 ITO 박막은 적절한 면저항과 가시광선 영역에서의 높은 투과율, 기판과의 강한 부착력을 보여 저항막 방식의 터치패널 분야의 응용에 매우 적합하다고 판단된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 터치패널의 전극으로 사용되는 ITO 박막의 전기, 광학적 특성을 저하시키지 않고, 내구성을 향상시키기 위하여 PET 기판 위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 열 증착하고, 그 위에 ITO 박막을 스퍼터링 증착한 후 진공에서 열처리함으로써 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따른 ITO 박막의 전기적, 광학적, 부착 특성 변화를 조사하고, 그 원인을 분석하였다. 그 결과 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따라 ITO 박막의 면저항 및

비저항은 증가하였으나, 제조된 ITO 박막의 전기적 특성은 저항막 방식의 터치 패널이 요구하는 특성에 적합하였고, SiO<sub>2</sub> 버퍼층 두께가 0 Å에서 100 Å으로 증가함에 따라 광학적 특성은 향상되었으며, SiO<sub>2</sub> 버퍼층 도입에 따라 PET 기판과 ITO 박막 사이의 부착력은 증가하였다. 따라서 SiO<sub>2</sub> 버퍼층을 도입한 ITO 박막은 저항막 방식의 터치패널 분야의 응용에 매우 적합하다고 판단된다.

#### 참고문헌

1. W. C. Song, J. of KIEEME (in Korean), 17 (2004) 1277.
2. B. S. Chiou, S. T. Hsieh, and W. F. Wu, J. Am. Ceram. Soc., 77 (1994) 1740.
3. A. K. Kulkarni, K. H. Schulz, T. S. Lim, and M. Khan, Thin Solid Film, 270 (1997) 1.
4. T. Minami, H. Sonohara, T. Kakumu, and S. Takata, Thin Solid Film, 270 (1995) 37.
5. W. F. Wu and B. Shiou, Thin Solid Film, 298 (1997) 221.
6. A. K. Kulkarni, T. S. Lim, M. Khan, and K. H. Schulz, J. Vac. Sci. Technol., A16(3) (1998) 1636.
7. Y. S. Huang, W. Q. Qiu, and C. P. Luo, Thin Solid Film, 472 (2005) 20.
8. M. R. Kreke, A. S. Badami, and J. B. Brady, Biomater, 26 (2005) 2975.
9. J. E. Gray, P. R. Norton, and K. Griffiths, Thin Solid Film, 484 (2005) 196.
10. T. Wu, W. Xiaolong, W. Yutao, and D. Longjiang, RARE METALS, 25 (2006) 65.
11. Y. Zhinong, L. Yuqiong, F. Xia, Z. Zhao, and W. Xue, Thin Solid Film, Available online (2009).
12. K. Y. Hwan, 홍익대학교과학기술연구논문집, 12 (2001) 1169.