

논문 23-4-12

## 기판 열처리가 롤투롤 스퍼터를 이용하여 성장시킨 터치 패널용 유연 ITO 투명 전극의 특성에 미치는 효과 연구

### Effect of Substrate Preheating on the Characteristics of Flexible and Transparent ITO Electrodes Grown by Roll-to-Roll Sputtering for Touch Panel Applications

김동주<sup>1,2</sup>, 이원영<sup>2</sup>, 김봉석<sup>2</sup>, 김한기<sup>1,a</sup>  
(Dong-Ju Kim<sup>1,2</sup>, Won-young Lee<sup>2</sup>, Bong-Seok Kim<sup>2</sup>, and Han-Ki Kim<sup>1,a</sup>)

#### Abstract

We report on the effect of PET substrate preheating on the characteristics of the flexible and transparent indium tin oxide (ITO) electrode grown by a specially designed roll-to-roll sputtering system for touch panel applications. It was found that electrical and optical properties of the roll-to-roll sputter grown ITO film were critically dependent on the preheating of the PET substrate. In addition, the roll-to-roll sputter-grown ITO film after post annealing test at 140°C for 90 min showed stable electrical and optical properties. The low sheet resistance and high optical transmittance of the ITO film grown on the preheated PET substrate demonstrate that the preheating process before ITO sputtering is one of the effective way to improve the characteristics of ITO/PET film. Furthermore, the superior flexibility of the ITO electrode grown on the preheated PET substrate indicates that the preheating treatment is a promising technique to obtain robust ITO/PET sample for touch panel applications.

**Key Words** : ITO, Roll-to-Roll sputtering, Touch panel, PET substrate

#### 1. 서론

최근 모바일 전자 기기 및 휴대폰의 일체화가 급속히 진행됨에 따라 모바일 멀티미디어기기를 손쉽게 작동 시킬 수 있는 터치패널(touch panel) 기술도 눈부시게 발전하고 있다. 터치패널의 구현 방식중 가장 널리 사용되고 있는 저항막 방식은 ITO 전극이 코팅되어 있는 두 장의 기판을 합착시킨 구조로, 손가락이나 펜으로 압력을 가해 상부와 하부의 전극층이 접촉되면 전기적 신호가 발생되

어 위치를 인지하는 방식으로 우수한 특성의 플렉시블 ITO 필름을 필요로 하게 된다[1,2]. 이러한 플렉시블 ITO 필름은 대형 롤투롤(roll-to-roll) 스퍼터를 이용해 polyethylene terephthalate (PET) 기판 상에 ITO 박막을 연속 스퍼터링 하여 제조하는데, ITO 전극의 특성 및 신뢰성이 DC 파워, Ar/O<sub>2</sub> 가스유량비, 공정압력, rolling 속도등의 여러 가지 공정 조건에 매우 민감하게 영향을 받는다[3-10]. 터치 패널용 ITO 필름의 경우 기존의 디스플레이용 ITO 전극과 달리 얇은 두께에 따른 높은 면저항과 투과도를 가지고 있고 매우 높은 신뢰성과 특성의 균일도를 유지해야 하기 때문에 신뢰성을 확보할 수 있는 ITO 성막 조건의 확보가 매우 중요하다. 특히 ITO 성막 직전 PET 기판의 열처리 유무에 따라 ITO 필름의 고온 내열성 테스트 후의 전기적, 광학적 특성 및 신뢰성이 영향을

1. 경희대학교 정보전자소재공학과  
(경기도 용인시 서천동 1)  
2. 지.텍(주)  
a. Corresponding Author : imdlhkkim@khu.ac.kr  
접수일자 : 2010. 1. 15  
1차 심사 : 2010. 3. 8  
심사완료 : 2010. 3. 16

받기 때문에 고품위의 ITO 전극개발을 위한 매우 중요한 공정으로 인식되고 있으나 아직까지 양산용 롤투롤 스퍼터 공정에서 ITO 성막 직전 기관의 열처리 공정이 ITO 특성에 미치는 영향에 대한 연구는 미진한 상태이다.

본 연구에서는 양산용 롤투롤 스퍼터를 이용하여 PET 기관상에 성막한 터치 패널용 ITO 필름의 특성과 ITO 성막 직전에 진행된 기관 열처리가 ITO 필름의 고온 챔버에서 열처리시 전기적, 광학적 특성에 주는 영향에 대해 연구하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에서는 고품위 터치패널용 ITO 필름을 양산하기 위해 자체 개발한 롤투롤 스퍼터 시스템을 사용하였고 시스템의 구성 및 사진은 그림 1과 같다. 기존의 양산용 롤투롤 스퍼터와 달리 degassing 챔버와 공정 챔버가 한 시스템에 구성되어 있다. Degassing 챔버는 그림 1에 나타내듯이 좌우측의 rewinder/unwinder 롤러에 의해 감겨지고 풀어지는 PET 기관의 수분 및 가스를 중앙부에 위치한 heater를 통해 제거하도록 설계되었다. 자세한 degassing 조건은 표 1에 나타내었다. 수분 제거후 공정 챔버로 옮겨진 1250 mm 폭의 PET 기관을 unwinder/rewinder 롤러에 장착한다. 그림 1(a)에 나타내듯이 unwinder 롤러로부터 풀려진 PET 기관은 guide 롤러를 거쳐 cooling drum에 도착하게 되고, cooling drum과의 물리적 접촉에 의해 PET 기관의 냉각이 일어나게 된다. ITO 캐소드 전에 장착된 할로겐 히터 상부로 PET 기관이 지나가면서 기관의 열처리가 진행되고 열 처리후 두 개의 ITO 캐소드 상부를 지나면서 연속적으로 ITO 박막이 PET 기관에 성막 되게 된다. 이때 10 wt% SnO<sub>2</sub>가 도핑된 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 타겟을 사용하여 1 mTorr의 공정 압력에서 2 m/min의 PET 기관 이송 속도로 20 nm 두께의 ITO 성막을 진행하였으며 Ar/O<sub>2</sub> 가스 유량비를 조절하여 ITO 박막의 전기적, 광학적 특성을 최적화 하였다. 이때 ITO 캐소드의 DC 파워와 cooling drum의 온도는 각각 3.5 kw와 45℃로 고정하였다. 표 2는 롤투롤 스퍼터를 이용하여 성막한 ITO 필름의 성막 조건을 나타내고 있다. 플렉시블 ITO 필름의 특성에 미치는 PET 기관의 열처리의 영향을 알아보기 위해 ITO 성막 직전에 열처리를 하지 않은 ITO 필름과 그림 1에 나타낸 것과 같이 ITO 캐소드 전에 온도 200℃로 설정된 할로겐 히터를 사용

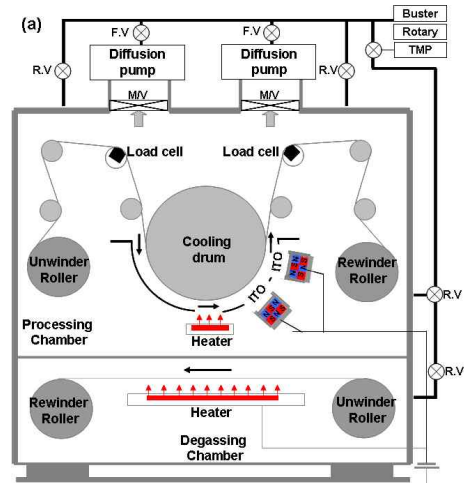


그림 1. (a) 양산용 롤투롤 시스템의 구조도 (b) 양산용 롤투롤 시스템 사진.

Fig. 1. (a) Schematic diagram of roll-to-roll sputter system and (b) picture of roll-to-roll sputter system.

하여 기관의 열처리 한후 ITO가 성막된 필름을 준비하였고, 각각의 ITO 필름을 별도의 고온챔버에서 140℃ × 90 min 동안 내열성 테스트를 진행하였다. 이렇게 롤투롤 스퍼터로 제작된 ITO 필름의 전기적 특성은 four-point probe를 이용하여 측정했고 투과도는 Nippon Denshoku 社の COH-300A를 이용하여 가시광(550 nm) 영역에서 분석하였다.

또한 FESEM 분석을 통해 최적화 공정에서 제작된 ITO 필름 표면 특성을 분석하였다. 플렉시블 ITO 필름의 유연성 및 부착력 분석은 자체 개발한 bending test system (ZB 100)을 이용한 굽힘 테스트를 통해 진행하였다.

표 1. PET 기판의 degassing 공정 조건.

Table 1. Degassing condition of the PET substrate.

Parameters	Degassing Conditions
Working Pressure	$1.0 \times 10^{-3}$
Roll Speed	4 m/min
Heater Temperature	160 °C
Tension	280 N

표 2. 롤투롤 스퍼터를 이용하여 성막한 플렉시블 ITO 박막의 성막 조건.

Table 2. Detailed deposition conditions of flexible ITO electrode on the PET substrate using roll-to-roll sputter.

Parameters	Process Conditions
Target	희성금속( $\text{In}_2\text{O}_3 : \text{SnO}_2 = 90:10$ )
Substrate	Carbide社 단면 H/C PET (1280 mm × 1000 m)
Base Pressure	$5.0 \times 10^{-6}$ mTorr
Working Pressure	$1.0 \times 10^{-3}$ mTorr
Deposition Gas	Ar/ $\text{O}_2$ (400 : 6-16)
DC Power	3.5 Kw
Pre-sputter	5 min
Heater Temperature	Heater: 200 °C (On/Off)
Roll Speed	2 m/min
Cooling Drum Temperature	45 °C
Distance	100 mm
Thickness	about 20 nm
Tension	220 N

3. 결과 및 고찰

그림 2는 롤투롤 스퍼터를 이용하여 상온에서 PET 기판에 성막한 ITO 박막의 산소 분압에 따른 면저항과 투과도를 나타낸다. 다른 공정조건에 비해 터치패널용 ITO 필름은 산소분압에 따라 전기적, 광학적 특성이 민감하게 변하기 때문에 산소 분압비를 이용한 최적화 공정을 진행하였다. 표 2에 나타내듯이 아르곤 유량비는 400 sccm으로 고정하고 산소 유량비를 6-16 sccm으로 변화시키며 ITO 박막을 성막하였다. 이때 모든 샘플은 ITO 성막 직전에 PET 기판의 열처리를 진행하지 않고 ITO 박막을 성막 하였으며 성막이 끝난 ITO 필름을 고온 챔버에서 140 °C에서 90 분 동안 열처리를 진행하여 ITO 박막의 전기적, 광학적 특성의 변화를

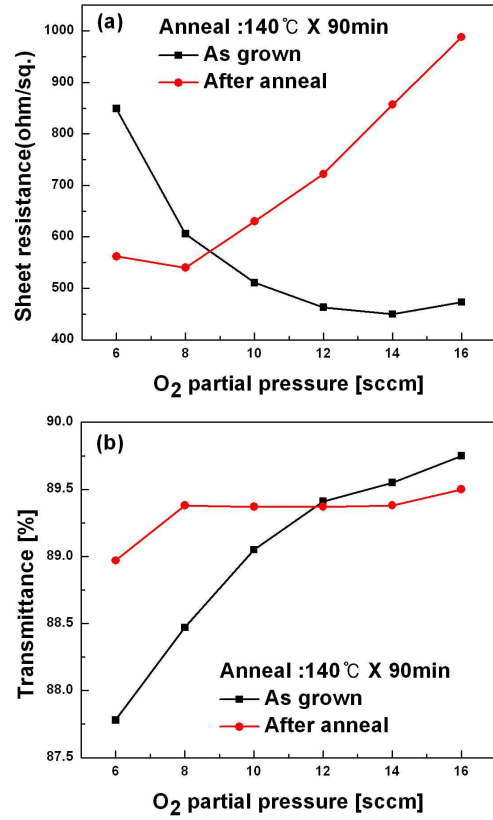


그림 2. 롤투롤 스퍼터를 이용하여 PET 기판상에 기판에 성막한 ITO 박막의 산소 분압과 내열 테스트에 따른 (a) 면저항과 (b) 투과도.

Fig. 2. (a) Sheet resistance and (b) optical transmittance of ITO films grown on the PET substrate by using Roll to Roll sputter system as functions of O<sub>2</sub> partial pressure and after post annealing.

관찰하였다. PET에 성막된 ITO 박막의 면저항은 아르곤/산소 유량비의 증가에 따라 전형적인 U 형태의 커브 모양을 나타내고 있으며, 특정 14 sccm의 산소 유량에서 가장 낮은 면저항(450 Ω/□)을 나타내고 있다. 이러한 아르곤/산소 유량비에 따른 면저항의 U커브는 ITO 박막내 점결함의 변화에 따라 나타나는 현상으로 대부분 투명 산화물 전극은 특정 Ar/ $\text{O}_2$ 에서 최소의 면저항을 나타내게 된다. 일반적으로 터치 패널 제작시 ITO 필름 및 터치패널의 신뢰성을 위해 후 열처리를 진행하기 때문에 후 열처리 후 ITO 필름의 전기적 광학적 특성의 평가가 매우 중요하다.

성막된 ITO/PET 시료를 140°C에서 90 분 동안 고온의 챔버에서 열처리 할 경우 그림 2(a)처럼 면저항의 변화가 나타나는데 낮은 산소 유량에서 성막한 박막의 면저항은 감소하고 높은 산소유량에서 성막시킨 ITO의 면저항은 급속히 증가하게 된다.

낮은 산소 유량에서 성장시킨 ITO/PET 샘플이 고온 챔버에서 열처리 후 면저항이 급속히 감소하는 현상은 열처리시 추가적인 산소의 유입으로 박막내의 점결함을 채워주어 In-Sn-O 간의 stoichiometry를 맞춰주기 때문으로 사료된다. 그러나 산소 유량이 8 sccm 이상일 경우 오히려 과잉 산소의 투입으로 인한 캐리어 농도 감소로 ITO 박막의 면저항 값이 증가하게 된다. 면저항과 마찬가지로 ITO 박막의 550 nm 파장에서의 투과도 역시 그림 2(b)와 같이 산소 유량 및 박막의 열처리에 민감하게 영향을 받게 된다. 열처리 전의 ITO 박막은 산소 유량비가 증가함에 따라 550 nm 파장에서의 투과도가 선형적으로 증가하는데 이는 전기적 특성과 마찬가지로 ITO 박막 내 존재하는 산소 공공이나 산소 치환과 같은 점 결함이 산소 유량의 증가로 줄어들기 때문으로 사료된다. ITO 박막내 다수의 점결함이 존재할 경우 빛의 scattering center로 작용할 수 있기 때문에 투과율의 저하를 유발하게 된다. 그러나 산소 유량을 증가시킬 경우 다수의 산소가 박막내로 침입하여 점 결함을 줄여주기 때문에 산소 유량비의 증가가 ITO 박막의 투과도 향상을 유발하게 된다. 이러한 샘플을 140°C에서 90 분 동안 열처리 할 경우 산소유량에 상관없이 전체적으로 높고 안정적인 투과도를 나타나게 된다. 그러나 이러한 높은 투과도에도 불구하고 고온의 챔버에서 열처리를 진행할 경우 ITO 박막의 면저항이 500 Ω/□ 이상으로 증가하기 때문에 터치 패널에 사용할 수 있는 범위를 넘어서게 된다. 따라서 고온의 챔버에서 열처리 이후에도 87% 이상의 광투과율과 500 Ω/□ 이하의 면저항을 갖는 ITO/PET 샘플을 제작하기 위해서는 추가적인 다른 공정조건을 필요하게 된다.

이를 위해 ITO 박막의 스퍼터 공정 전에 PET 기판의 열처리를 그림 3(a)에 나타낸 열처리 장치(할로겐 히터)를 이용하여 진행함으로써 ITO 박막의 면저항의 저하와 투과도의 향상을 유도하였다. PET 기판의 효과적인 열처리를 위해 할로겐 히터 자체의 온도는 200°C로 설정하였다. 그림 3(b)은 성막직전의 열처리를 거친 PET 기판상에 성막한 ITO 박막의 전기적 특성과 성막후 140°C에서 90 분 동안 고온 챔버에서 열처리 진행후 변화된 면저항을 나타낸다. ITO 성막 직전에 할로겐 히터를

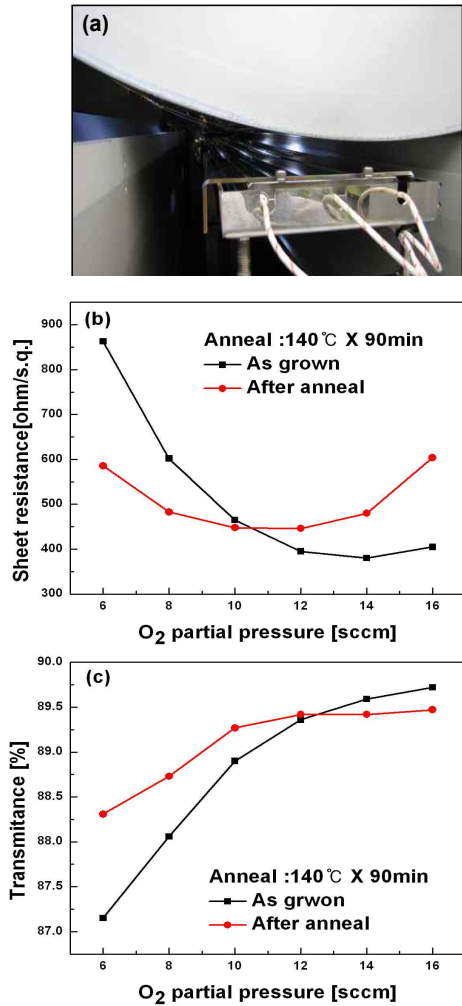


그림 3. (a) PET 기판 전 열처리 장치 사진, (b) 산소유량비 변화에 따라 성장시킨 ITO/PET 샘플의 PET 기판 전 열처리 따른 면저항 및 (c) 투과도.

Fig. 3. (a) Picture of pre heat treatment system prior to the ITO sputtering. (b) Sheet resistance and (c) optical transmittance of the ITO electrode grown on pre heat treated PET substrate as a function of oxygen flow ratio.

이용하여 기판의 온도를 높임으로써 성막 직전에 기판 열처리를 진행하지 않은 샘플보다 산소유량비 10-16 sccm 영역에서 전반적으로 낮은 면저항을 얻을 수 있었다.

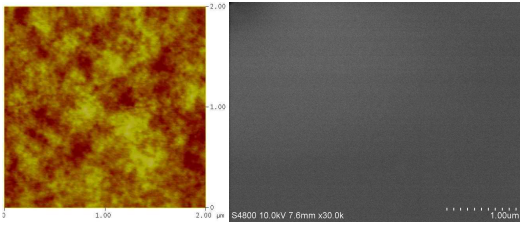


그림 4. PET 기판의 전 열처리 공정을 진행한 후의 ITO 필름의 표면 (a) AFM 이미지와 (b) FESEM 이미지.

Fig. 4. (a) AFM and (b) FESEM surface image of the ITO film grown on the pre heat treated PET substrate.

이는 증착 전 PET 기판의 온도 상승으로 인해 PET 기판의 추가적인 outgassing이 일어나고, 동시에 기판에 도달하는 스퍼터된 ITO 원자의 이동도를 기판 열에너지로 높여 줌으로써 좀 더 밀도가 높은 비정질 ITO 박막이 성장하기 때문이다. 특히 산소 유량비 10 sccm에서 성장시킨 ITO 박막의 경우 465  $\Omega/\square$ 의 면저항을 나타내며 후 열처리 이후에는 448  $\Omega/\square$ 의 더 낮아진 면저항을 보여준다. 뿐만 아니라, 광투과도 역시 후 열처리 전에는 88.9%를 나타내나 후 열처리를 진행한 후에는 광투과도가 89.2%로 증가된 것을 보여준다. 이와 같은 ITO 필름의 면저항과 높은 투과도는 터치 패널용 ITO 필름으로 적용할 수 있는 수준이며 ITO 성막 직전 진행되는 PET 기판의 열처리 공정이 낮은 저항과 높은 투과도를 확보할 수 있는 효과적인 공정 기술임을 나타낸다.

그림 4는 최적의 성장 조건 ( $Ar/O_2=400/10$  sccm)에서 ITO 성막된 PET 기판을 열처리 후 성막한 ITO 박막의 표면 AFM 이미지와 FESEM 이미지를 나타낸다. AFM 표면 이미지로부터 표면 조도 (room mean square roughness) 0.416 nm의 낮은 값을 얻을 수 있었고, 상온에서 성막한 비정질 구조의 박막이기 때문에 표면에 핀홀, protrusion, 크랙과 같은 표면 결함 없는 매우 평탄한 표면 상태를 나타내고 있다. 일반적으로 투명 전극의 표면이 평탄하지 않으면 최종 터치패널의 제품으로서 빛의 굴절현상 및 전기적 특성을 저하시키는 원인으로 작용하기 때문에 평탄한 표면은 터치 패널용 ITO 전극이 가져야할 매우 중요한 요소이다. 이에 본 롤투롤 공정을 통해 상온에서 기판의 열처리 직후 성막된 ITO 필름은 터치 패널에

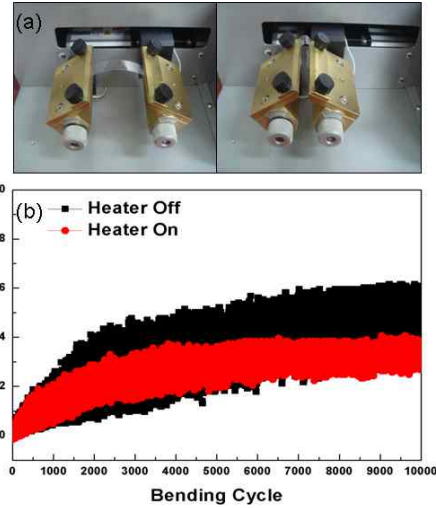


그림 5. (a) 벤딩 테스터 사진과 (b) 최적 조건에서 ITO 성막된 기판의 열처리 유무에 따른 ITO/PET 샘플의 Bending test 결과.

Fig. 5. (a) Pictures of bending tester. (b) Bending test result of optimized ITO film grown on untreated and pre heat treated PET substrate by roll to roll sputtering system.

사용되기에 매우 적합할 것으로 사료된다. 그림 5(b)는 최적 조건에서 성막된 ITO 필름에서 ITO 박막의 성막 직전의 PET 기판 열처리 유무에 따른 유연성을 비교 평가한 bending test 결과이다. 85 mm × 20 mm 사이즈의 ITO/PET 샘플을 그림 5(a)의 사진처럼 클램프에 고정시키고 한쪽 클램프를 왕복 운동시켜 ITO/PET 샘플의 bending test를 진행하였다. bending 시 기판의 양쪽 각도는 각각 25°로 설정하였고, 기판의 bending 거리는 80 mm이며, 속도와 bending 횟수는 각각 160 mm/sec, 2000회로 설정하고, 1회 벤딩시 5번의 저항 값을 모니터링 하도록 하였다.

$R_0$ 는 초기 ITO의 저항을 나타내고  $\Delta R$ 은 bending에 따른 저항의 변화를 나타낸다. 그림 5(b)에서 나타내듯이 기판의 ITO 박막의 얇은 두께와 비교적 높은 면저항 때문에 전 영역에서 낮은  $\Delta R/R_0$  값을 나타낸다. 또한 상온에서 성막한 ITO 박막의 경우 대부분 비정질 특성을 나타내기 때문에 결정질 ITO 보다 우수한 유연성을 나타내게 된다. 특히 PET 기판을 열처리한 후 성막시킨 ITO 박막이 PET 기판 열처리 공정 없이 성막한

ITO 보다 우수한 유연성을 나타낸다. 이는 충분한 outgassing으로 PET 기판과 ITO 박막간의 접착력이 향상되었기 때문으로 사료된다. 또한 추후에는 Si 타겟을 이용하여 SiO<sub>2</sub> 버퍼층 증착을 통해 ITO 박막의 투과율 및 부착력 향상을 시킬 경우 더욱 우수한 유연성을 갖는 ITO/PET 기판을 제작할 수 있을 것으로 기대한다. 또한 본 실험을 통해 최적화된 ITO/PET 기판으로 제작한 터치패널의 특성에 관한 실험은 진행 중이며 추후 본 학회지를 통해 보고할 예정이다.

#### 4. 결론 및 향후 연구

본 연구에서는 직접 설계 제작한 양산용 롤투롤 스퍼터 시스템을 통해 제작한 터치패널용 ITO/PET 필름의 성막 직전 PET 기판의 열처리 효과에 대해 보고하였다. 일반적으로 알려진 고온의 챔버에서 진행되는 ITO 필름의 내열성 테스트에 따른 ITO 박막의 신뢰성을 확보하기 위해 ITO 성막 직전 PET 기판의 열처리를 진행할 경우 내열성 테스트 후에서 우수한 특성의 ITO 필름을 제작할 수 있었다. 최적 Ar/O<sub>2</sub> 유량비 (400/10 sccm)에서 PET 기판 열처리 후 성막 시킨 ITO 박막은 465 Ω/□의 면저항을 나타내었고 140℃에서 90분 동안의 내열테스트 열 후에도 448 Ω/□의 낮은 면저항을 나타내었다. 광투과도 역시 PET 기판의 열처리를 통해 신뢰성 높은 ITO 필름을 확보할 수 있었다. 이는 터치패널에 적용 될 수 있는 범위를 모두 만족하고 있다. 또한 Bending test에서도 PET 기판 열처리 후 성막한 ITO 박막이 보다 우수한 유연성을 나타낼 수 있었다. PET 기판의 열처리 후 성막 시킨 ITO 박막의 우수한 전기적, 광학적, 기계적 특성은 PET 기판의 열처리시 degassing 공정 중 충분히 제거되지 않은 가스나 불순물을 열처리 공정을 통해 충분히 제거하여 깨끗한 PET 기판 상에 ITO 박막을 성막 시켰기 때문이며 열처리시 기판에 주어진 열에너지에 의해 보다 밀도가 높은 ITO 박막이 성장했기 때문으로 사료된다.

#### 참고 문헌

[1] 전자자료사, "최근 터치패널 시장과 기술동향", (월간)반도체-FPD, 통권 제254호, p. 74, 2009.

[2] 알앤디비즈, "터치스크린 시장 동향", EIC매거진, 통권 제3호, p. 16, 2009.

[3] 조성우, 최광혁, 배정혁, 문종민, 정진아, 정순옥, 박노진, 김한기, "롤투롤 스퍼터 시스템을 이용하여 PET 기판에 성막 시킨 ITO박막의 특성 연구", 한국재료학회지, 18권, 1호, p. 32, 2008.

[4] 강자연, 김동원, 조규일, 우병일, 윤환준, "PET 기판위에 SiO<sub>2</sub> 버퍼층에 따른 ITO 박막의 부착 및 전기적 광학적 특성 연구", 한국표면공학회지, 42권, 1호, p. 21, 2009.

[5] Y.-S. Park, K.-H. Choi, and H.-K Kim, "Room temperature flexible and transparent ITO/Ag/ITO electrode grown on flexible PES substrate by continuous roll-to-roll sputtering for flexible organic solar photovoltaics", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 42, p. 235109, 2009.

[6] K.-H. Choi, J.-A. Jeong, J.-W. Kang, D.-G. Kim, J. K. Kim, S.-I. Na, D.-Y. Kim, S.-S. Kim, and H.-K. Kim, "Characteristics of flexible indium-tin oxide electrode grown by continuous roll to roll sputtering process for flexible organic solar cells", Solar Energy Materials and Solar Cell, Vol. 93, p. 1248, 2009.

[7] Y.-S., S.-W. Jeong, W.-J. Cho, and H.-K. Kim, "Highly flexible indium zinc oxide electrode grown on PET substrate by cost efficient roll to roll sputtering systems", Thin Solid Films, Vol. 518, p. 3071, 2010.

[8] H.-Y. Yeom, "A study of the effect of process oxygen on stress evolution in d.c magnetron-deposited tin doped indium oxide", Thin Solid Films, Vol. 411, p. 17, 2002.

[9] J.-Y. Lee, "Growth and characterization of indium tin oxide thin films deposited on PET substrate", Thin Solid Films, Vol. 515, p. 1634, 2008.

[10] L. Hao, "Thickness dependence of structural electrical and optical properties of indium tin oxide(ITO) films deposited on PET substrate", Appl. Surf. Sci., Vol. 254, p. 3504, 2008.