

고주파 마그네트론 스퍼터링법에 의해 제작된 ITZO (indium tin zinc oxide) 박막의 전기적 및 광학적 특성

서진우 · 정양희 · 강성준*

Electrical and Optical Properties of ITZO Thin Films Deposited by RF Magnetron Sputtering

Jin-Woo Seo · Yang-Hee Joung · Seong-Jun Kang*

Department of Electrical & Semiconductor Engineering, Chonnam National University, Yeosu 550-749, Korea

요 약

본 연구에서는 RF magnetron sputtering 법으로 상온에서 공정압력 (1~7 mTorr) 을 변화시켜가며 유리기판 (Eagle 2000) 위에 ITZO (In_2O_3 : SnO_2 : ZnO = 90wt.% : 5wt.% : 5wt.%) 박막을 제작하여, 구조적 특성과 광학적 및 전기적 특성을 조사하였다. XRD 와 FESEM 측정을 통해, 공정압력에 무관하게 모든 ITZO 박막이 부드러운 표면의 비정질 구조를 가지고 있음을 확인할 수 있었다. 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막이 비저항 $3.08 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$, 가시광 영역에서 평균 투과도 81 % 와 재료평가지수 $10.52 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$ 의 가장 우수한 전기적 및 광학적 특성을 나타내었다.

ABSTRACT

ITZO (In_2O_3 : SnO_2 : ZnO = 90wt.% : 5wt.% : 5wt.%) thin films were fabricated on glass substrates (Eagle 2000) at room temperature with various working pressures (1~7 mTorr) by RF magnetron sputtering. The influence of the working pressure on the structural, electrical, and optical properties of the ITZO thin films were investigated. The XRD and FESEM results showed that all ITZO thin films are amorphous structures with very smooth surfaces regardless of the working pressure. Amorphous ITZO thin films deposited at 3 mTorr showed the best properties, such as a low resistivity, high transmittance, and figure of merit of $3.08 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$, 81 %, and $10.52 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$, respectively.

키워드 : ITZO 박막, 고주파 마그네트론 스퍼터링, 투과도, 비저항, 재료평가지수

Key word : ITZO thin film, RF magnetron sputtering, Transmittance, Resistivity, Figure of merit

접수일자 : 2013. 04. 09 심사완료일자 : 2013. 05. 05 게재확정일자 : 2013. 05. 24

* **Corresponding Author** Seong-Jun Kang (E-mail : ferroksj@chonnam.ac.kr, Tel:+82-61-659-7317)

Department of Electrical & Semiconductor Engineering, Chonnam National University, Yeosu 550-749, Korea

Open Access <http://dx.doi.org/10.6109/jkiice.2013.17.8.1873>

print ISSN: 2234-4772 online ISSN: 2288-4165

©This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.
Copyright © The Korea Institute of Information and Communication Engineering.

I. 서 론

정보화 기술의 발전으로 인하여 평판 디스플레이 산업이 눈부시게 발전하고 있으며, 점점 대면적화 및 고정밀화 되어가고 있는 추세이다. 이에 따라 이들 디스플레이 소자에 사용되는 투명 전도막 (transparent conductive oxide) 에 대한 연구도 점점 더 중요해지고 있다. In 의 함량이 90~95 % 인 ITO (indium tin oxide) 박막은 우수한 전기 전도성 (~10 Ω/sq.) 과 가시광 영역에서 높은 투과도 (80~85 %) 을 나타내 평판 디스플레이 소자와 태양전지 등에 가장 널리 사용되고 있는 투명 전도막이다.[1-2] 하지만 ITO 박막을 디스플레이 소자에 적용하는 데는 몇 가지 개선점이 요구된다. 디스플레이 소자들에 응용 가능한 좋은 특성의 ITO 박막을 얻기 위해서는 고온 공정 ($\geq 300^{\circ}\text{C}$) 이 반드시 필요하고, 표면이 거칠어 소자의 수명에 치명적인 영향을 줄 수 있다.[3-4] 특히 OLED 와 같은 플렉시블 디스플레이 나 전자 종이 (e-paper) 등 미래 디스플레이 소자의 경우에는 저온 증착 공정이 반드시 필요하다.

이러한 ITO 박막의 결점을 해결하기 위한 시도로 전도성 고분자 (PEDOT : PSS)[5], 그래핀 (graphene)[6] 등의 신규 투명 재료 등이 다양하게 연구 중이지만 높은 저항과 낮은 광투과율 등의 문제로 아직까지는 결정질 ITO 박막을 대체할만한 수준의 특성을 확보하지 못하고 있다. 또 다른 연구로는 In_2O_3 를 기반으로 하는 IZO (indium zinc oxide) 박막에 대한 것인데, 스퍼터링 타겟으로 제작하기가 복잡하고 가격이 비싸다는 단점을 가지고 있다.[7] 최근에 ITZO (indium tin zinc oxide) 가 ITO 를 대체할 수 있는 차세대 투명 전도막으로 많은 관심을 끌고 있다. ITO 박막에 ZnO 를 도핑한 ITZO 박막은 비정질/결정질 전이온도가 높아져 ITO 박막에 비해 안정한 비정질 구조를 가질 수 있다.[8] 비정질 ITZO 박막은 J. H. Bae 등[9] 과 D. H. Kim 등[10] 의 연구에서 보듯이, 전기적 및 광학적 특성이 ITO 박막과 유사하거나 더 우수한 것으로 보고되고 있다. 그러나, 아직 다양한 증착방법과 공정조건에 따른 ITZO 박막에 대한 전기적 및 광학적 특성에 관한 연구가 상당히 미흡한 형편이다.

이에 본 연구에서는 고주파 마그네트론 스퍼터링 (RF magnetron sputtering) 법으로 ITZO 박막을 제작하여, 공정압력에 따른 박막의 구조적, 전기적 및 광학적

특성들을 체계적으로 조사하여 차세대 투명 전도막으로서의 응용 가능성을 조사하였다.

II. 실험방법

고주파 마그네트론 스퍼터링 법을 이용하여 유리기판 (Eagle 2000) 위에 ITZO 박막을 증착시켰다. 유리기판 표면에 있는 불순물을 제거하기 위하여 아세톤 (15분) / 알코올 (15분) / 증류수 1차 (10분) / 증류수 2차 (10분) 초음파 세척을 하였고 질소 가스를 이용하여 건조하였다. ITZO ($\text{In}_2\text{O}_3 : \text{SnO}_2 : \text{ZnO} = 90\text{wt.}\% : 5\text{wt.}\% : 5\text{wt.}\%$) 타겟과 유리기판을 스퍼터 챔버내에 고정시킨 후, 초기 진공을 2×10^{-6} Torr 으로 만들었다. 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고, 공정압력을 1 에서 7 mTorr 로 변화시켜 ITZO 박막을 제작하였다.

ITZO 박막의 구조적 특성을 조사하기 위해 X-ray Diffractometer (XRD, Philips, PW3020) 를 이용하였으며, 박막의 미세구조와 표면형상은 FESEM (Hitachi, S-4200)을 이용하여 측정하였다. 광학적 특성은 UV-Vis Spectrometer (Varian, Cary-500) 를 이용하여 측정하였고, 전기적 특성은 Van der Pauw 법을 이용한 Hall effect measurement (Accent, HL5500PC) 를 실시하여 조사하였다. 논문 필요에 따라 3-4 개의 장으로 편집할 수 있습니다. 본문의 제목은 장, 절, 부절에 따라 번호를 구분합니다.

III. 결과 및 논의

그림 1 은 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고 공정압력을 1, 3, 5, 7 mTorr 로 변화시켜 가며 증착한 ITZO 박막의 XRD 패턴을 나타낸 것이다. 그림 1 에서 보듯이, 모든 ITZO 박막은 공정압력에 상관없이 2θ 값 33° 부근에서 완만한 피크를 나타내었다. 이 완만한 피크는 낮은 기판온도로 인해 ITZO 박막이 비정질 구조를 갖고 있음을 나타내는 것이다. 스퍼터링 공정 동안 ITZO 박막이 플라즈마에 노출되어도 안정한 비정질 구조를 나타냄을 볼 수 있는데, 이는 In_2O_3 구조내에 SnO_2 와 ZnO 의 불혼화성 (immiscibility) 때문에 ITZO 박막이 열적 안정성을 갖기 때문으로 보고되고

있다.[9]

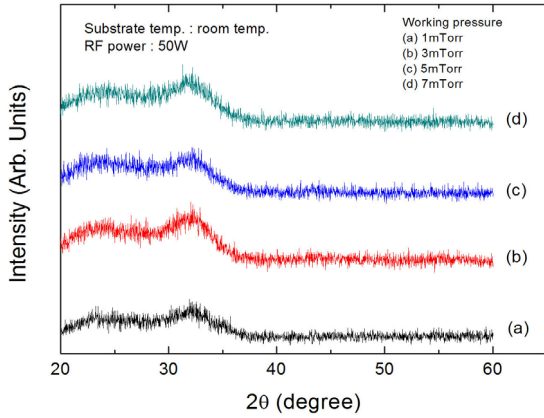


그림 1. 공정압력에 따른 ITZO 박막의 XRD 패턴
Fig. 1 XRD patterns of ITZO thin films with various working pressure

그림 2 는 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고 공정압력을 1, 3, 5, 7 mTorr 로 변화시켜 가며 증착한 ITZO 박막의 표면을 FESEM 으로 관찰한 결과를 나타낸 것이다.

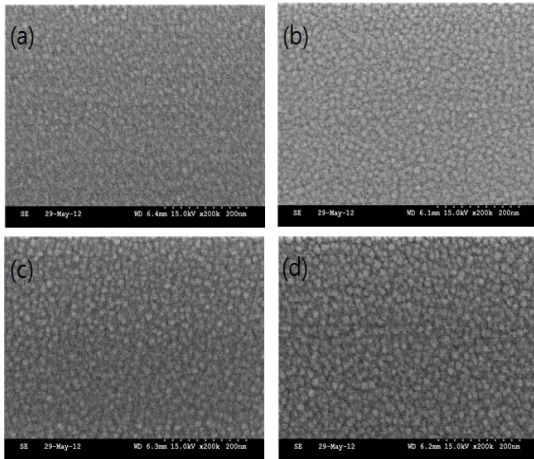


그림 2. 공정압력에 따른 ITZO 박막의 FESEM 표면 사진 : (a) 1 mTorr, (b) 3 mTorr, (c) 5 mTorr, (d) 7 mTorr
Fig. 2 Surface FESEM images of the ITZO thin films deposited at (a) 1 mTorr, (b) 3 mTorr, (c) 5 mTorr, (d) 7 mTorr

그림 2 에서 보듯이, 공정압력에 상관없이 모든 ITZO 박막은 핀홀이나 크랙 같은 결함이 없는 매우 부드러운 표면을 나타내었다.

그림 3 에 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고 공정압력을 변화시켜가며 증착한 ITZO 박막의 비저항과 면저항 값을 나타내었다. 그림 3 에서 보듯이, 공정압력 7 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막의 경우 비저항 값이 다소 크며, 공정압력이 3 mTorr 로 감소함에 따라 비저항 값이 작아지는 경향을 나타내었다. 공정압력이 1 mTorr 로 더 감소하면 비저항 값이 다시 증가하였다. 공정압력이 낮으면 우수한 이동도를 갖는 박막 구조가 얻어져서 비저항 값이 감소한다고 보고되고 있다.[11] 그러나, 공정압력이 너무 낮으면 스퍼터링 입자들의 평균 자유경로 (mean free path) 가 길어져서 박막에 충돌하는 입자들의 에너지가 너무 크게 된다. 이로 인해 박막에 결함을 야기해서 전기적 특성이 나빠지게 된다. 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막이 $3.08 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 비저항과 $11.41 \Omega/\text{sq.}$ 의 면저항으로 가장 우수한 전기적 특성을 나타내었다.

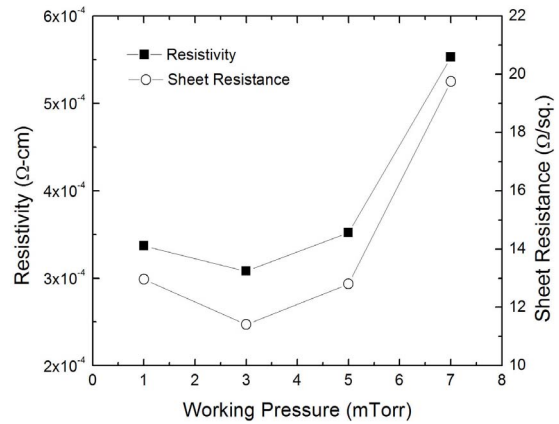


그림 3. 공정압력에 따른 ITZO 박막의 비저항과 면저항
Fig. 3 Resistivity and sheet resistance of the ITZO thin films with various working pressure

그림 4 는 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고 공정압력을 변화시켜가며 증착한 ITZO 박막의 투과도 곡선을 나타낸 것이다. 공정압력에 따른 투과도 곡선의 커다란 차이점은 나타나지 않았으며, 자외선 및 청색 영역(450~550nm)에 비해 녹색 영역(550~600nm)

에서의 투과도가 높게 나타났다. 가시광 영역 (400 ~ 800 nm)에서의 평균 투과도는 공정압력 3 mTorr에서 증착한 ITZO 박막에서 81 % 정도로 가장 높게 나타났다.

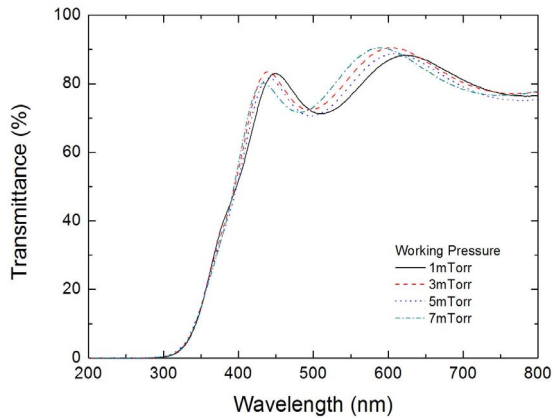


그림 4. 공정압력에 따른 ITZO 박막의 투과도 곡선
Fig. 4 Optical transmission spectra of the ITZO thin films with various working pressure

재료평가지수 (Figure of merit, Φ_{TC}) 는 유사한 비저항 값과 투과도를 나타내는 투명 전도막의 성능을 비교하는 매우 유용한 도구이다. 면저항과 가시광 영역에서의 평균 투과도를 이용하여 Haacke 에 의해 제안된 재료평가지수[12]를 식 (1) 에 의해 계산할 수 있다.

$$\phi_{TC} = T^{10} / R_{sh} \quad (1)$$

여기서, T 는 가시광 영역에서의 평균 투과도이고 R_{sh} 는 ITZO 박막의 면저항이다.

그림 5 에 공정압력에 따른 ITZO 박막의 가시광 영역에서 평균 투과도와 재료평가지수를 나타내었다. 그림 3 과 4 에서 예상할 수 있듯이, 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막이 $10.52 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$ 의 가장 큰 재료평가지수를 나타내었다. 이를 토대로 ITZO 박막의 최적 공정압력은 3 mTorr 임을 알 수 있다.

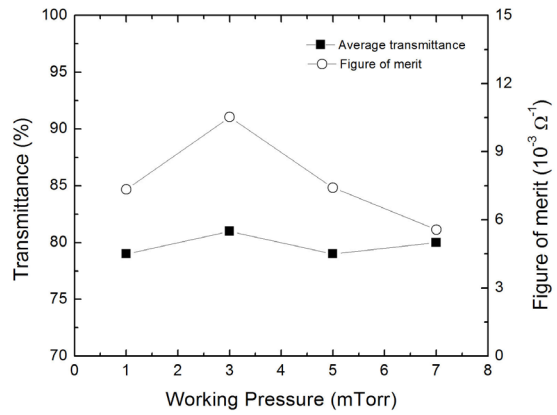


그림 5. 공정압력에 따른 ITZO 박막의 가시광 영역에서의 평균 투과도와 재료평가지수
Fig. 5 Average transmittance in the visible region and figure of merit of ITZO thin films with various working pressure

IV. 결 론

본 연구에서는 고주파 마그네트론 스퍼터링 (RF magnetron sputtering) 법으로 상온에서 RF 파워를 50 W 로 고정시키고 공정압력을 변화시켜가며 유리기판 (Eagle 2000) 위에 ITZO ($In_2O_3 : SnO_2 : ZnO = 90wt. \% : 5wt. \% : 5wt. \%$) 박막을 제작하여, 구조적 특성과 광학적 및 전기적 특성을 조사하였다. XRD 측정을 통해 공정압력에 상관없이 모든 ITZO 박막이 비정질 구조를 가지고 있음을 확인할 수 있었다. ITZO 박막의 표면을 FESEM 으로 관찰한 결과, 공정압력에 상관없이 모든 ITZO 박막이 핀홀이나 크랙 같은 결함이 없는 매우 부드러운 표면을 나타내었다. Hall 측정 결과, 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막이 $3.08 \times 10^{-4} \Omega\text{-cm}$ 의 비저항과 $11.41 \Omega/\text{sq}$ 의 면저항으로 가장 우수한 전기적 특성을 나타내었다. 투과도 곡선을 측정한 결과 공정압력에 따른 커다란 차이점은 나타나지 않았으며, 가시광 영역 (400 ~ 800 nm) 에서의 평균 투과도는 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막에서 81 % 정도로 가장 높게 나타났다. 면저항과 가시광 영역에서의 평균 투과도를 이용하여 재료평가지수를 구한 결과 공정압력 3 mTorr 에서 증착한 ITZO 박막이 $10.52 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$ 의 가장 큰 값을 나타내었다.

본 연구를 통해 상온에서 증착한 비정질의 ITZO 박막이 우수한 광학적 및 전기적 특성을 나타냄을 확인할 수 있었고, 향후 공정 조건에 대한 체계적인 연구를 진행한다면 OLED 와 같은 차세대 플렉시블 디스플레이의 투명 전도막으로서 매우 유망한 재료가 될 것으로 사료된다.

REFERENCES

- [1] U. Betz, M. K. Olsson, J. Marthy, M. F. Escola, and F. Atamny, "Thin Films Engineering of Indium Tin Oxide : Large Area Flat Panel Displays Application," *Surf. Coat. Technol.*, vol. 200, pp. 5751-5759, 2006.
- [2] J. Y. Lee, J. P. Shim, and H. K. Jung, "Influence of Surface Texturing on the Electrical and Optical Properties of Aluminum Doped Zinc Oxide Thin Films," *Journal of information and communication convergence engineering*, vol. 9, pp. 461-465, 2011.
- [3] H. S. Jang, D. H. Choi, Y. S. Kim, J. H. Lee, and D. I Kim, "The Luminescence and Optoelectrical Properties of ITO Films Prepared by a Sputter Type Negative Metal Ion Deposition," *Optics Communications*, vol. 278, pp. 99-103, 2007.
- [4] J. Liu, D. Wu, and S. Zeng, "Influence of Temperature and Layers on the Characterization of ITO Films," *J. Materials Processing Technology*, vol. 209, pp. 3943-3948, 2009.
- [5] Y. Yang, Y. Jiang, J. Xu, and J. Yu, "Conducting PEDOT-PSS Composite Films Assembled by LB Technique," *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, vol. 302, pp. 157-161, 2007.
- [6] Y. Liang, J. Frisch, L. Zhi, H. N. Arasi, X. Feng, J. P. Rabe, N. Koch, and K. Mullen, "Transparent, Highly Conductive Graphene Electrodes from Acetylene Assisted Thermolysis of Graphite Oxide Sheets and Nanographene Molecules," *Nanotechnology*, vol. 20, pp. 434007 (2009).
- [7] D. J. Son, Y. D. Ko, D. G. Jung, J. H. Boo, S. H. Choa, and Y. S. Kim, "Thermal Effect on Characteristics of IZTO Thin Films Deposited by Pulsed DC Magnetron Sputtering," *Bull. Korean Chem. Soc.*, vol. 32, pp. 847-851, 2011.
- [8] G. P. Crawford, *Flexible Flat Panel Displays*, New York, Wiley, 2005.
- [9] J. H. Bae, J. M. Moon, S. W. Jeong, J. J. Kim, J. W. Kang, D. G. Kim, J. K. Kim, J. W. Park, and H. K. Kim, "Transparent Conducting Indium Zinc Tin Oxide Anode for Highly Efficient Phosphorescent Organic Light Emitting Diodes," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 155, pp. J1-J6, 2008.
- [10] D. H. Kim, W. J. Kim, S. J. Park, H. W. Choi, and K. H. Kim, "Electrical and Optical Properties of In-Zn-Sn-O Thin Film Deposited on Polymer Substrates Through Facing Targets Co-sputtering System," *Surf. Coat. Technol.*, vol. 205, pp. S324-S327, 2010.
- [11] Y. C. Lin, J. Y. Li, and W. T. Yen, "Low Temperature ITO Thin Film Deposition on PES Substrate Using Pulse Magnetron Sputtering," *Appl. Sur. Sci.*, vol. 254, pp. 3262-3268, 2008.
- [12] G. Haacke, "New Figure of merit for Transparent Conductors," *J. Appl. Phys.*, vol. 32, pp. 4086-4089, 1976.



서진우(Jin-Woo Seo)

전남대학교 전기 및 반도체공학과 석사과정
 ※관심분야 : 반도체 재료, 반도체 공정



정양희(Yang-Hee Joung)

1985년 8월 인하대 응용물리학과 졸업(공학석사)
 1993년 8월 인하대 전자재료공학과 졸업(공학박사)
 1988-1995년 LG반도체 선임연구원
 1995-현재 전남대학교 전기 및 반도체공학과 교수
 ※관심분야 : VLSI 공정 및 반도체 물성



강성준(Jun-Seong Kang)

1994년 8월 인하대 전자재료공학과 졸업(공학석사)

1999년 2월 인하대 전자재료공학과 졸업(공학박사)

2000년 - 현재 전남대학교 전기 및 반도체공학과 교수

※ 관심분야 : II-VI 화합물 반도체, 기능성 박막, 반도체 공정 및 재료