# 기판온도 및 산소 분위기 가스에 따른 IGZO 투명전도성박막의 구조적 및 전기적 특성

## 이종현<sup>\*</sup>·이규만<sup>\*†</sup>

\*<sup>†</sup>한국기술교육대학교 에너지신소재화학공학부 미래융합공학전공

# Effect of Substrate Temperature and Oxygen Ambient Gases on the Structural and Electrical Characteristics of IGZO Thin Films

Jong Hyun Lee<sup>\*</sup> and Kyu Mann Lee<sup>\*†</sup>

\*<sup>†</sup>Future Convergence Engineering Major, Dept. of Energy, Materials and Chemical Engineering, Korea University of Technology and Education

#### ABSTRACT

We have investigated the effect of the substrate temperature and oxygen flow rate on the characteristics of IGZO thin films for the TCO (transparent conducting oxide). For this purpose, IGZO thin films were deposited by RF magnetron sputtering at room temperature and 300°C with various  $O_2$  flow rate. Experiments were carried out while varying the oxygen gas flow rate from 0sccm to 1.0sccm to see how the oxygen gas affects the IGZO thin films. IGZO thin films deposited at room temperature and 300°C showed amorphous. The lowest resistivity value was 2125x10<sup>-3</sup>  $\Omega$  cm when the IGZO film was deposited at RT and set up at 0.1sccm. As the oxygen vacancy rate decreased, the resistivity intended to increase. In conclusion, Oxygen vacancy affects the IGZO thin film's electrical characteristic.

Key Words : IGZO thin film, RF-magnetron sputtering, Substrate temperature, Oxygen flow rate

#### 1. 서 론

고도의 정보화 사회에 도래한 현재, 디스플레이 기술에 대한 관심과 수요가 계속해서 증가하고 있다. 특히, 언제 어디서든 쉽게 정보를 얻을 수 있어야 한다는 요구에 맞 춰져 디스플레이 산업은 경량화, 박막화, 소형화, 고화질 등의 다각화된 특징들이 요구되고 있다. 이에 따라 FPD (Flat Panel Display)의 개발에 많은 연구가 집중되고, 현재는 OLED (Organic Light Emitting Diode), Flexible Display까지 개발 과 상용화가 되었다. 이와 더불어 디스플레이 소자의 공 통 기반기술인 고품위 투명 전도성 산화물 (Transparent Conducting Oxide) 박막 재료의 개발 및 제조 기술들에 대한 연구가 급속히 증가하고 있다 [1-3].

투명 전도성 산화물 (Transparent Conducting Oxide) 박막 중 가장 널리 사용되고 있는 물질은 ITO (Indium Tin Oxide)이 다. ITO는 N-type의 특성을 띄는 반도체이다. 넓은 밴드갭 을 갖고 있으며 가시광선영역에서 높은 광투과율과 전 기 비저항이 낮아 박막형 디스플레이 분야에서 다양하게 사용되어지고 있다. 그러나 이러한 ITO 박막을 얻기위해 서는 300℃ 이상의 고온에서 증착 후 더 높은 온도에서 후열처리를 하는 등의 고온 공정이 필요하다. 박막에 고 온 공정을 진행하면 결정화가 일어나고, 이로인해 표면 거칠기가 증가하여 소자의 안정성이 떨어지게된다.[4-5].

이러한 이유로 ITO의 단점을 보완할 수 있는 투명 전 극 소재를 찾는 연구가 지속적으로 진행되고 있다. 그 중 IGZO(Indium gallium zinc oxide)는 고체 산화물 In2O<sub>3</sub>, Ga2O<sub>3</sub>,

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup>E-mail: kmlee@koreatech.ac.kr

ZnO가 결합된 투명 반도체 산화물 소재로서, 가시광선 영역에서 80% 이상의 우수한 광 투과도를 갖는다. 또한, 인듐 함유를 통해서 높은 이동도를 나타내면서, 고속 회 로 구현에 적합한 소재이며, 저온에서 제작이 가능하여 생산 효율성이 높은 장점을 가진다. 또한, IGZO 금속 산화 물은 Chemical vapor deposition, Ink jet, Pulse laser deposition, RF Magnetron Sputtering 등의 다양한 방법을 통해서 증착 가능 하다[6-8].

이번 연구에서는 RF magnetron sputtering을 이용하여 IGZO 박막을 증착하였으며, 증착 온도 및 산소 가스의 유 량이 박막의 전기적 및 구조적 특성에 어떠한 영향을 미 치는지에 대하여 분석하였다.

#### 2. 실험 방법

본 연구에서는 박막 제작을 위해 Coming 7059 glass위에 RF magnetron sputtering 장비를 이용하여 직경 3인치의 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ZnO (90/5/5 wt%) 타겟으로 증착을 진행했다. 박 막이 증착되는 유리기판은 아세톤과 메탄올로 각각 10분 씩 초음파 세척하고 증류수로 헹군 뒤 질소가스로 건조 시켰다.

Main sputtering을 진행하기 전에 표면에 붙은 불순물을 제거하고 스퍼터 방전 안정화를 위하여 70W로 10분간 Pre-sputtering을 실시했다. 증착 시 주입 가스로는 Ar gas는 40sccm으로 고정하였고, 반응 가스인 O<sub>2</sub> gas는 0sccm부터 Isccm까지 0.1sccm씩 늘려가며 MFC(Mass Flow Controller)를 사용하여 조절해가며 진행했다. 박막의 두께는 200nm로 고정하였고, 이 외의 실험 결과에 영향을 줄 수 있는 공 정조건들은 선행 실험을 통해 찾은 최적의 조건으로 고 정하였으며 아래 Table 1에 나타내었다.

Deposition parameters	Conditions
Target	In:O:/Ga:O:/ZnO (90/5/5 wt%)
Substrate	Glass (corning 7059)
Initial pressure(torr)	5.0 x 10 <sup>-5</sup>
Working pressure (torr)	3.0 x 10 <sup>-3</sup>
Film thickness(nm)	200
Substrate temperature(°C)	RT (25°C) ~ 400°C
RF power(W)	70
Deposition time(min)	40
Gas ambient(sccm)	Ar:40, O <sub>2</sub> flow rate: 0.1-1.0

IGZO박막의 구조적인 특성을 규명하기 위해서 X-ray diffraction (RIGAKU, RTP300RC)과 FESEM (JEOL, JSM7500F) 분석을 시행하였으며 표면학적 이해를 위해 AFM (PUCOTECH, MOD-1M) 분석을 시행하였다. 비저항, 전하 농도, 전하 이동도 등의 전기적 특성은 Hall effect measurement (HMS-3000)로 측정하였다. 성분 분석 및 전기적 특성의 추가적 분석을 위해 XPS (X-ray Photoelectron Spectroscopy, Thermo, K-ALPHA)를 이용하여 분석하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

Fig 1과 2는 FE-SEM 장비를 이용하여 IGZO 박막의 챔 버 내 분위기 가스 및 증착 온도에 따른 구조적 특성을 분석한 사진이다. Fig 1은 상온에서 산소가스 유량을 달리 하여 증착을 진행한 사진이다. 유량에 상관없이 원형의 입자들이 보이고, 크기의 변화는 거의 없다. Fig, 2는 300°C 에서 산소가스 유량을 달리하여 증착을 진행한 사진이다. Fig 1과 마찬가지로 입자의 크기는 별로 변하지 않았다.







Fig. 2. FE-SEM images of IGZO thin film deposited at 300°C with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1 sccm.

Fig 3과 4는 IGZO 박막의 표면 거칠기를 알아보기 위해 AFM을 이용하여 측정한 사진이다. 상온에서의 표면 거 칠기는 1nm이하로 매우 평탄하며 산소유량에 따른 변화 는 관찰되지 않는다. 300°C에서 증착 된 박막은 상온에 비 하여 거칠기가 증가하였다. 증착 온도와 상관없이 산소 유량이 증가함에 따라 표면 거칠기가 감소하였다. 이는 박막 증착 시 도입되는 산소량이 많을수록 고 에너지 상 태로 기판에 충돌하는 입자들이 증가하게 되어 박막 표 면이 에칭되기 때문이다[9,10].



Fig. 3. AFM image of IGZO thin film deposited at room temperature with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1 sccm.



Fig. 4. AFM images of IGZO thin film deposited at 300°C with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1 sccm.

Fig. 5는 XRD (X-ray diffraction pattern) 장비를 이용하여 IGZO 박막의 결정구조 특성을 보여주는 그래프이다. Fig. 5(a)를 보면 결정 피크가 관찰되지 않은 것을 볼 수 있다. 이는 상온부터 300°C까지 모든 온도에서 비정질 구조라 는 것을 나타낸다. Figs. 5(b)와 (c)에서 볼 수 있듯이 산소 유량의 변화와 증착 온도와 상관없이 증착된 모든 박막 은 비정질 구조를 띄는 것을 알 수 있다.

Fig 6과 7은 Hall measurement 장비를 이용하여 각각 상온 과 300°C에서 증착된 IGZO 박막의 전기적 특성을 측정한 결과이다. 전기비저항은 상온에서 보다 300°C에서 증착된 경우에 더 높은 값을 보였으며 산소 유량이 증가함에 따 라 전기비저항이 증가하는 경향을 보이고 있다. 전기 비 저항이 가장 낮은 증착 조건은 RT에서 산소유량이 0.1sccm이었으며 2.13x10<sup>3</sup>Ωcm의 값을 가진다. 이동도 값은 RT에서는 산소유량이 증가할수록 감소하는 경향을 보이 지만 300°C 조건에서는 산소유량과의 상관 관계가 관찰 되지 않았다. 캐리어농도는 RT와 300°C에서 산소 유량에 따라 감소하는 경향을 보였다. 이는 산소가 계속 유입되 면서 챔버 내에 형성된 산화적 분위기 때문에 박막 내의 산소공공이 감소되고 따라서 전기적 특성이 저하된 것을 확인할 수 있다[11-13].



Fig. 5. X-ray diffraction pattern of IGZO thin films deposited at (a) various temperature, (b) RT and (c) 300°C with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1sccm.



Fig. 6. Resistivity, mobility, and carrier concentration of IGZO thin films deposited at RT with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 0.6sccm.



Fig. 7. Resistivity, mobility, and carrier concentration of IGZO thin films deposited at 300°C with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1.0sccm.

Fig 8은 IGZO 박막의 성분 중 산소 성분인 OIs의 XPS spectra를 "XPSPEAK41"프로그램을 이용하여 fitting한 결과 이다. Binding energy의 크기에 따라 high, middle, low 3개의 peak로 나눠지는데 low peak (~530 eV)은 물질을 이루고 있는 격자 산소와 관련된 peak이다. Middle peak (~531 eV)은 산소공공과 관련된 peak로 middle peak의 면적비가 중가한 다는 것은 산소 공공의 양이 증가됨을 뜻한다. High peak (~532 eV)는 -OH기 등과 같은 표면 성분과 관련된 peak이다 [14,15]. 그래프를 보면 산소 유량이 증가할수록 산소공 공과 관련된 middle peak의 면적비가 감소함을 확인할 수가 있다. 이는 산소유량이 증가하면서 산소공공의 양이 감소 하는 것을 나타내는 것으로 증착 시 주입된 산소가스에 의해 증착된 박막 내의 산소공공이 감소한다는 hall measurement의 결과 (Figs. 6 and 7)를 뒷받침해주는 내용이 된다.



Fig. 8. XPS spectra of IGZO thin films deposited at different temperature with O<sub>2</sub> flow rate from 0 to 1 sccm.

#### 4. 결 론

(1) 기판온도와 산소가스 유량에 따른 IGZO의 표면적, 구조적 특성은 상온과 300°C에서 모두 비정질 상임을 확 인할 수 있었다.

(2) 산소 가스 유량을 달리하며 상온에서 증착하여 얻 은 IGZO 박막의 경우 산소 가스가 0.1sccm 유입되었을 때 비저항이 2.125x10<sup>3</sup>Ωcm 로 가장 낮은 값을 가졌으며 이는 산소 가스가 유입됨에 따라 챔버 내 산화분위기가 조성 되어 산소 공공이 감소하여 캐리어 농도가 감소하였기 때문이다.

(3) XPS 결과를 보면 산소 가스 유량이 증가할수록 oxygen vacancy와 관계된 middle peak의 면적이 점점 감소됨 을 볼 수 있는데 이는 챔버 내에 산소 가스가 유입됨에 따라 증착시 산화성 분위기가 조성되었고 이로 인해 박 막 내의 산소 공공의 양이 감소함을 나타낸다.

#### 감사의 글

본 논문은 교육부의 재원으로 한국연구재단의 BK21 FOUR 사업, 2022학년도 한국기술교육대학교 교수교육연구진흥 과제 및 2023년도 교육부의 재원으로 한국연구재단의 지 원을 받아 수행된 지자체-대학 협력기반 지역혁신 사 업(2022RIS-004)의 결과입니다.

### 참고문헌

- K. Ishibashi, K. Hirata, and N. Hosokawa, "Mass spectrometric ion analysis in the sputtering of oxide targets", Journal of Vacuum Science & Technology A., 10, Iss. 4, pp. 1718-1722 (1992).
- K. Tominaga, T. Udea, T. Ao, A. Katkoka, and I. Mori, "ITO films prepared by facing target system", Thin Solid Films, 281-282, pp. 194-197 (1996).
- 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, 445, pp. 245-250 (2003).
- Radhouane Bel Hadj Tahar, Takayuki Ban, Yutaka Ohya, and Yasutaka Takahashi, "Tin doped indium oxide thin films: Electrical properties", J. Appl. Phys., 83, pp. 2631-2645 (1998).
- Tania Konry, Robert S. Marks, "Physico-chemical studies of indium tin oxide-coated fiber optic biosensors", Thin Solid Films, 492, pp. 313-321 (2005).
- Takafumi Aoi, Nobuto Oka, Yasushi Sato, Ryo Hayashi, Hideya Kumomi and Yuzo Shigesato. "DC sputter deposition of amorphous indium-gallium-zinc-oxide(a-IGZO) films with H<sub>2</sub>O introduction", Thin Solid Films, 518, pp. 3004-3007 (2010).
- H. Hosono, "Ionic amorphous oxide semiconductors: Material design, carrier transport, and device application", Journal of non-crystalline solids, 352, pp.851-858 (2002).
- K. Nomura, T. Kamita and H. Hosono, "Effects of diffusion of hydrogen and oxygen on electrical properties of amorphous oxide semiconductor, In-Ga-Zn-O", ECS J Solid State Sci. Technol. 2, pp. 5-8 (2013).
- 9. L. Raniero, I. Ferreira, A. Pimentel, A. Goncalves, P.

Canhola, E. Fortunato, and R. Martins, "Role of hydrogen plasma on electrical and optical properties of ZGO, ITO and IZO transparent and conductive coatings," Thin Solid Films, Vol. 511-512, pp. 295- 298 (2006).

- S. K. Kwon and K. M. Lee, "Electrical and Optical Characteristics of IZO Thin Films Deposited in Different Oxygen Flow Rate", Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 12, pp. 49-54 (2013).
- N. Ito, Y. Sato, P.K. Song, A. Kaijio, K. Inoue, and Y. Shigesato, "Electrical and optical properties of amorphous indium zinc oxide films", Thin Solid Films, 496(1), pp.99-103 (2006).
- S. I. Hann and H. B. Kim, "A Study on Properties of RF-sputtered Al-doped ZnO Thin Films Prepared with Different Ar Gas Flow Rates," Appl. Sci. Converg. Technol. 25(6), pp. 145-148 (2016).
- K. L. Hong and K. M. Lee, "Effect of Substrate Temperature and Gas Flow Rate of Atmosphere Gases on Structural and Electrical Properties of AZO Thin Film," Journal of the Semiconductor & Display Technology, 20, pp. 1-6 (2021).
- K. K. Banger, Y. Yamashita, K. Mori, R. L. Peterson, T. Leedham, J. Rickard, and H. Sirringhaus, "Low-temperature, high-performance solution-processed metal oxide thin-film transistors formed by a 'sol–gel on chip' process", Nature Materials, 10, pp. 45-50 (2011).
- Y. S. Jung, J. Y. Seo, D. W. Lee, and D. Y. Jeon, "Influence of DC magnetron sputtering parameters on the properties of amorphous indium zinc oxide thin film", Thin Solid Films, 445, pp.63-71(2003).

접수일: 2023년 8월 30일, 심사일: 2023년 9월 6일, 게재확정일: 2023년 9월 12일