1999년도 대한전기학회 하계학술대회 논문집 1999. 7.19-21

분말 타겟을 이용한 플라스틱 기판 상의 ITO 박막 제조에 관한 연구

이재형*[1], 박용관[1], 신재혁[2], 신성호[2], 박광자[2]
[1] 성균관대학교 전기전자 및 컴퓨터공학부, [2] 국립 기술 표준원

A Study on the ITO Thin Films on Plastic Substrate Using by Powdery Targ

J. H. Lee*[1], Y. K. Park[1], J. H. Shin[2], S. H. Shin[2], K. J. Park[2]
[1] School of Electrical & Computer, Sungkyunkwan Univ., [2] Inorganic Chemistry Division, N.

Abstract - ITO films on plastic substrate were prepared by DC magnetron sputtering method using powdery target and their properties were investigated as a function of the deposition conditions. As the sputtering power and total pressure were higher, the resistivity of ITO films increased. The optical transmittance deteriorated with increasing sputtering power and thickness. As the total pressure increased, however, the optical transmittance improved at visible region of light. From these results, we could deposited ITO films with 8×10^{-3} Ω-cm of resistivity and 80% of transmittance at optimal conditions.

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, 액정디스플레이(liquid crystal display), 터치스크린(touch screen) 등의 투명전극 재료, 전계발광(electroluminescent) 소자, 표면발열체, 열반사 재료 등 다양한 분야에 응용되고 있다.

이들 분야에서 대부분 기판으로 사용하고 있는 유리의 경우 파손의 우려와 유연성, 기판 두께 등에 제한이 있으므로 이러한 문제점들을 해결하기 위해 최근 acryl, poly carbornate, polyethlene terephthalate(PET)와 같은 투명 플라스틱 기판 위에 ITO 박막을 증착하는 기술에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다[1-5]. 그러나 플라스틱 기판의 경우 열에 의해 쉽게 변형되므로 유리 가판을 사용한 경우와는 달리 sputtering power, 기판온도 및 열처리 온도 등의 제조조건에 제한을 받게 된다. 따라서 이러한 플라스틱 기판에 ITO 박막을 증착할 경우 유리 기판을 사용한 경우와는 다른 적합한 증착조건을 조사해야 한다.

일반적으로 ITO 투명전도막을 제조하는 방법으로는 DC sputtering법이 주로 사용되며, ITO의 경우 산화물 자체가 전류를 통하기 때문에 타겟으로 사용이 가능하다. 산화물을 타겟으로 사용할 경우 In-Sn 합금을 타겟으로 사용할 경우와는 달리 별도의 산소 공급이 필요하지 않고 재현성이 우수한 물성을 얻을 수 있는 장점이 있다. 그러나 합금 타겟에 비해 취급상의 주의가 요구되며, 지나치게 sputtering power가 높을 경우 타겟이 파괴되는 현상이 발생될 수 있으므로 실험 도중 많은 주의가 요구된다. 또한 ITO와 같이 타겟 가격이 비싼 경우 타겟 이용의 효율성은 박막 제조 비용 측면에서 매우 중요하게 된다. 일반적으로 스퍼터링 타겟의 국부적인 소모로 인해 이용 효율은 보통 20% 이하이다[6]. 따라서 타겟 이용 효율의 향상은 박막의 제조 비용을 감소시키고, 타겟 교환에 소비되는 시간을 줄여주게 된다.

본 연구에서는 타겟 제작에 드는 비용을 줄이고, 타겟 이용의 효율성을 높이기 위해 기존의 세라믹 타겟 대신 분말 타겟으로 사용하여 플라스틱 기판 상에 ITO 박막을 DC magnetron sputtering법에 의해 제조하고, 제조조건에 따른 ITO 박막의 전기적, 광학적 특성을 조사하였다.

2. 실험방법

ITO 박막을 증착할 기판으로 PET와 비교를 위해 slide glass를 사용하였다. 유리 기판은 T. C. E., 아세톤, 메탄올 순으로 20분간 초음파 세척하고, D. I. water로 rinse한 후 질소 gun으로 물기를 제거하여 사용하였다. PET 기판의 경우 세척액과의 화학적 반응을 방지하기 위해 메탄올만을 이용하여 20분간 초음파 세척하였다.

분말 타겟을 이용한 ITO박막 제조를 위해 본 연구에서는 DC magnetron sputter 장비를 사용하였다. 먼저 chamber 안을 mechanical pump와 turbo pump를 이용하여 10^{-6}Torr 이하로 배기한 후 argon gas를 주입하여 원하는 압력을 유지시켜 시편을 제조하였다. 이때 기판은 PET film의 변형을 방지하기 위해 가열하지 않았다. Target으로는 ITO(In_2O_3+10wt% SnO_2) powder를 copper holder에 넣고 약간의 압력으로 press하여 사용하였다.

ITO 박막의 물성은 sputtering power, 작업 진공도 및 산소 분압비, 기판온도, 열처리 등과 같은 제조조건에 따라 크게 변화하기 때문에 최적의 증착조건을 조사하기 위해 제조조건을 변화시켜가며 박막을 제조하였다. 표 1에는 ITO 박막 제조에 사용된 제조조건을 나타내었다.

Table 1. Deposition conditions of ITO films prepared by DC magnetron sputtering method

Deposition parameter	Condition
target-substrate distance	6 cm
sputtering gas	Ar
sputtering power	10~80 Watt
total pressure	2.2~19 mTorr
substrate temperature	room
thickness	500~4000 Å

제조한 ITO 박막의 두께는 surface profiler (Tencor 500)를 이용하여 측정하였으며, 결정구조를 조사하기 위해 X-선 회절검사(Simens Co., German)를 하였다. 파장에 따른 광투과율은 UV-Visible spectrophotometer(UNICAM, Philips, U. S. A.)를 이용하여 기판에 수직한 방향으로 광을 입사시켜 측정하였다. 이때의 파장범위는 300~900 nm로 하였다. ITO 박막의 비저항은 4-point probe법을 이용하여 측정하였고, 박막 내부의 캐리어 농도와 이동도는 Hall 측정장치를 이용하여 측정하였다.

3. 실험결과 및 고찰

그림 1은 sputtering power에 따른 ITO 박막의 증착률을 나타낸 것이다. Sputtering power가 증가함에 따라 ITO 박막의 증착률은 지수 적으로 커지는 경향을 나타내었다. 이것은 power가 증가함에 따라 분말 타겟에 전달되는 에너지가 커지고, 그 결과 타겟으로부터 보다 많은 입자들이 스퍼터되어 기판 표면에 도달하기 때문이다. 그러나 세라믹 타겟을 사용한 경우보다 상대적으로 낮은 증착속도를 나타내었는데, 이것은 분말 타겟의 밀도가 세라믹 타겟의 밀도보다 훨씬 작기 때문이다.

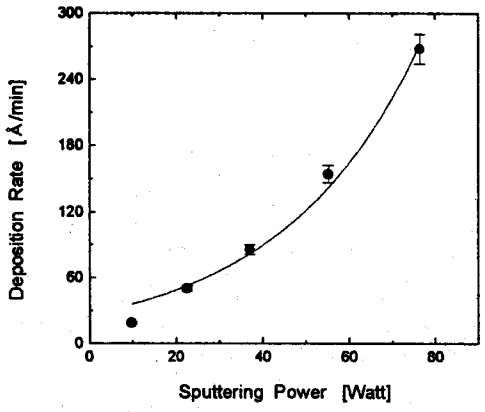

Fig. 1. Deposition rate of ITO films as a function of the sputtering power

그림 2는 sputtering power와 total pressure를 일정하게 유지하였을 때 증착시간에 따른 ITO 박막의 두께를 나타낸 것이다. 그림에서 볼 수 있듯이 증착시간이 길어질수록 ITO 박막의 두께는 선형적으로 증가함을 알 수 있다.

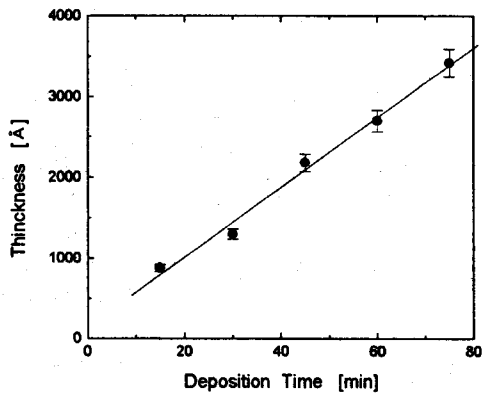

Fig. 2. Thickness of ITO films as a function of the deposition time

그림 3은 total pressure에 따른 ITO 박막의 증착률을 나타낸 것이다. Total pressure가 높아짐에 따라 ITO 박막의 증착률이 감소함을 관찰할 수 있다. 일반적으로 스퍼터링에서 total pressure를 높일 경우 타겟으로부터 스퍼터된 입자들이 기판 표면에 도달하기 전 챔버 내의 가스입자들과 보다 많은 충돌을 일으켜 기판에 도달하는 입자의 수가 줄어들게 되고, 결과적으로 증착률이 감소한다.

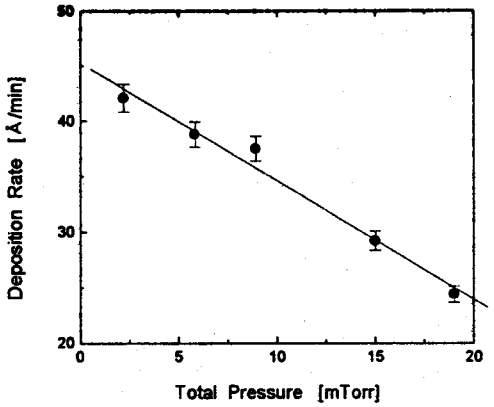

Fig. 3. Deposition rate of ITO films as a function of the total pressure

ITO 박막의 결정구조를 알아보기 위하여 X-선 회절 검사를 하여 그 결과를 그림 4에 나타내었다. XRD 회절 검사 결과 낮은 sputtering power에서는 ITO 또는 In_2O_3에 대응하는 어떠한 peak도 관찰되지 않는데, 이것은 증착된 ITO 박막이 비정질 형태의 결정구조를 가지고 성장했음을 의미한다. 그러나 power가 증가함에 따라 cubic phase In_2O_3의 (222)면에 대응하는 peak가 나타나기 시작하며, 55 Watt 이상의 power에서는 (440)면에 해당하는 강한 peak가 관찰되었다. 이러한 결정구조 및 우선방위의 변화는 타겟으로부터 스퍼터된 입자의 에너지에 관계된다. 즉, sputtering power가 높을수록 기판 표면에 도달하는 입자의 에너지가 증가하고, 기판에서 결정성장이 촉진된다.

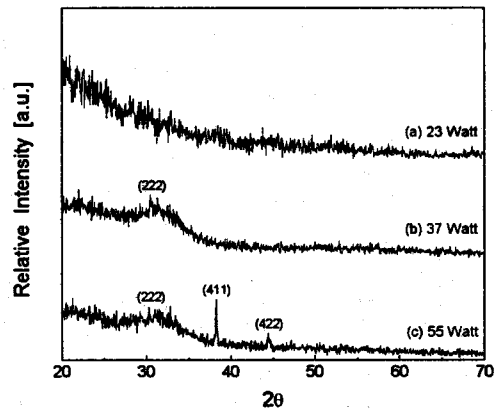

Fig. 4. X-ray diffraction patterns of ITO films deposited at various sputtering power

그림 5는 sputtering power에 따른 ITO 박막의 비저항 변화를 나타낸 것이다. 기판의 종류에 관계없이 sputtering power가 높아짐에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 또한 낮은 power에서는 유리 기판 위에 증착된 ITO 박막이 PET 기판 위에 증착된 막보다 작은 비저항 값을 나타내지만 37 Watt 이상의 power에서는 오히려 PET 기판 위에 증착된 박막의 비저항이 작은 것으로 조사되었다. 또한 일정 제조조건에서 증착된 ITO

박막의 비저항은 막이 두꺼워질수록 감소하는 경향을 나타내었다. Total pressure에 따른 비저항은 초기에는 압력이 높아질수록 감소하지만 압력을 더욱 높일 경우 오히려 커진다.

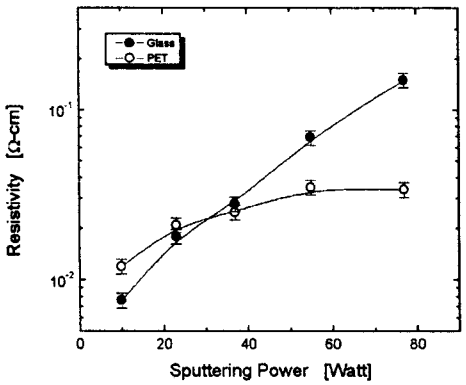

Fig. 5. Electrical resistivity of ITO films as a function of the sputtering power

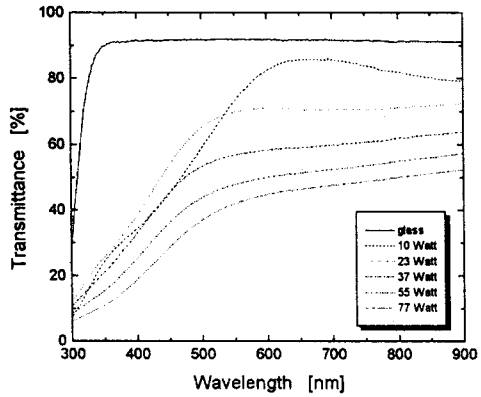

Fig. 6. Optical transmittance of ITO films deposited on glass substrate with various sputtering power

그림 6과 7은 각각 유리 기판과 PET 기판에 증착된 ITO 박막의 광투과율을 나타낸 것이다. 유리 기판 위에 증착된 ITO 박막의 경우 낮은 sputtering power에서는 흡수단 이상의 파장 영역에서 80% 이상의 광투과율을 나타내었으나, power가 증가함에 따라 가시광 영역에서의 투과율은 감소하였고, 흡수단이 단파장 쪽으로 이동함을 관찰할 수 있다. 이러한 흡수단의 이동은 밴드갭의 변화를 의미한다. PET 기판 위에 증착된 ITO 박막의 광투과율은 sputtering power가 10 Watt에서 23 Watt로 증가함에 따라 향상되지만 그 이상의 power에서는 오히려 감소하는 경향을 나타내었다. 한편, 일정 조건에서 증착된 박막의 광투과율은 막 두께가 증가할수록 급격히 저하되었고, total pressure가 높아짐에 따라 크게 향상됨을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

플라스틱 기판 상에 DC magnetron sputtering법에 의해 ITO 박막을 제조하여 증착조건에 따른 박막의 전기적, 광학적 특성을 조사하였다.

ITO 박막의 증착속도는 sputtering power에 따라 증가하였으나 total pressure가 높아짐에 따라 감소하는 경향을 나타내었다. 전기 비저항의 경우 기판의 종류에 관계없이 sputtering power 및 total pressure가 증가함에 따라 커짐을 관찰할 수 있었다. ITO 박막의 광투과율은 sputtering power 및 두께 증가에 따라 저하되었지만, total pressure가 높아짐에 따라 향상되었다. 이러한 결과들로부터 최적 증착조건에서 8×10^{-3} Ω-cm의 비저항 값 및 가시광 영역에서 평균 80% 이상의 광투과율을 갖는 ITO 박막을 제조할 수 있었다.

향후 ITO 박막의 전기 전도도 및 광투과율을 향상시키기 위해 스퍼터링 시 수소 가스 주입에 따른 박막의 물성변화 및 열반사 재료로의 응용 가능성을 조사하기 위해 적외선 영역에서의 열차폐 효과에 대한 연구를 진행하고자 한다.

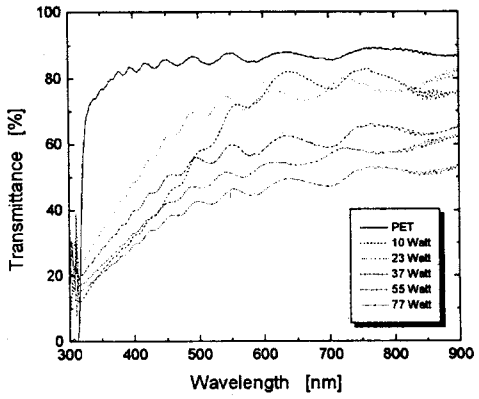

Fig. 7. Optical transmittance of ITO films deposited on PET substrate with various sputtering power

[참 고 문 헌]

[1] Bi-Shiou Chiou, Shu-Ta Hsieh, and Wen-Fa Wu, J. Am. Ceram. Soc., 77(7), p.1740-1744, 1994

[2] T. Minami, H. Sonohara, T. Kakumu, and S. Takata, Thin Solid Films, 270, p.37-42, 1995

[3] Wen-Fa Wu, Bi-Shiou, Thin Sold Films, 298, p.221-227, 1997

[4] A. K. Kulkarni, K. H. Schulz, T. S. Lim, M. Khan, Thin Solid Films, 308-309, p.1-7, 1997

[5] A. K. Kulkarni, T. S. Lim, M. Khan, and Kirk H. Schulz, J. Vac. Sci. Technol. A16(3), 1998

[6] Y. K. Yang, Surf. Coat. Techol., 37, p.315, 1989