

TiO₂ 완충층이 IGZO/TiO₂ 이중층 박막의 전기적, 광학적 성질에 미치는 영향

문현주 · 김대일[†]
울산대학교 첨단소재공학부

Influence of TiO₂ Buffer Layer on the Electrical and Optical Properties of IGZO/TiO₂ Bi-layered Films

Hyun-Joo Moon, Daeil Kim[†]

School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan, 680-749, Korea

Abstract IGZO single layer and IGZO/TiO₂ bi-layered films were deposited on glass substrate at room temperature with radio frequency magnetron sputtering to investigate the effect of TiO₂ buffer layer on the electrical and optical properties of the films. For all deposition, the thickness of IGZO and TiO₂ Buffer layer was kept at 100 and 5 nm, respectively. In a comparison of figure of merit, IGZO films with a 5-nm-thick TiO₂ buffer layer show the higher figure of merit ($8.40 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$) than that of the IGZO single layer films ($6.23 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$) due to the enhanced optical transmittance and the decreased sheet resistance of the films. The observed results mean that a 5 nm thick TiO₂ buffer layer in the IGZO/TiO₂ films results in better electrical and optical performance than conventional IGZO single layer films.

(Received September 1, 2015; Revised September 7, 2015; Accepted September 11, 2015)

Key words : IGZO, TiO₂, Magnetron sputter, AFM, Figure of Merit

1. 서 론

미량의 Sn이 첨가된 In₂O₃(ITO)와 Ga이 포함된 ZnO(GZO) 등의 투명전도성 산화물(Transparent conducting oxide; TCO) 박막은 높은 가시광 투과도(~80%)와 자외선 및 적외선 영역의 우수한 반사율을 동시에 가지며, 비교적 낮은 비저항특성(~10⁻³ Ωcm) 또한 갖기 때문에 디스플레이 및 가스센서의 전극재료로 활용도가 매우 높다[1]. 특히 ITO (Indium Tin Oxide) 박막은 태양전지 및 다양한 디스플레이 투명전극으로 사용되고 있지만, 차세대 투명 박막 트랜지스터(Transparent Thin Film Transistor; TTFT) 전극소재로 적용하기 위해서는 전하이동도가 낮은 문제점을 가지고 있다.

기존의 ITO 박막증착은 Radio Frequency(RF) 마그네트론 스퍼터링이 주로 사용되고 있으나, 적절한 전기전도도와 높은 가시광 투과도를 확보하기 위하여

200°C 이상의 증착온도[1] 또는 증착 후 고온 어닐링공정을 추가로 실시하고 있다[2]. 따라서 차세대 유연성을 갖는 TTFT 제조에는 상온증착 공정이 가능한 새로운 투명전극의 필요성이 대두되고 있다.

최근 이러한 전기적, 광학적 특성이 개선된 투명전극으로 저온증착에서도 빠른 이동도와 높은 가시광 투과도를 갖는 In과 Ga이 첨가된 ZnO(IGZO) 박막이 개발되어 많은 연구가 진행되고 있다[3]. 특히, 비정질 IGZO 박막의 전기적 특성은 TFT소자 수명에 중요한 요소이기 때문에 박막의 전기전도도 및 전하이동도를 향상시키고자 하는 연구가 전반적으로 진행되고 있다[4]. C. H. Cheng은 미량의 Ti가 도핑된 IGZO TFT를 제작하였으나, IGZO:Ti의 명확한 조성비 제어가 용이하지 않으며, 300°C 이상의 공정온도에 따른 기판재료 선택에 제약이 있음을 보고하였다[5].

본 연구에서는 IGZO 단층박막의 전기적, 광학적

[†]Corresponding author. E-mail : dkim84@ulsan.ac.kr
Copyright © The Korean Society for Heat Treatment

Table 1. Deposition conditions of IGZO film and TiO₂ buffer layer

Parameters	Conditions
Target (Thickness)	IGZO, 100 nm, TiO ₂ , 5 nm
Base Pressure [Torr]	6.0×10^{-7}
Deposition Pressure [Torr]	1.0×10^{-3}
Ar gas flow rate [sccm]	10
RF power density [W/cm ²]	2.5
Deposition rate (nm/Min.)	IGZO, 3.4, TiO ₂ , 1.1

특성을 향상시키기 위해 실온에서 RF 마그네트론 스퍼터로 TiO₂ 완충층(Buffer layer)을 증착하고, 상부에 IGZO 박막을 적층으로 증착하여, IGZO/TiO₂ 박막의 전기적, 광학적 특성 변화를 비저항 측정 및 자외선-가시광 분광기를 이용하여 고찰하였다.

2. 실험방법

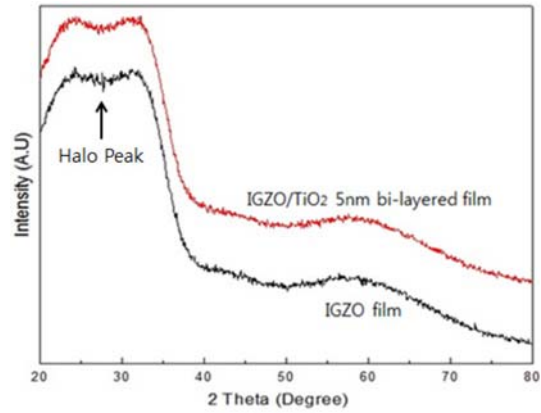
본 연구에서는 IGZO 100 nm/TiO₂ 5 nm 적층박막을 IGZO(3 Inch, I n₂O₃:Ga₂O₃:ZnO = 1:1:1 At. %, Purity 99.99%) 타겟과 TiO₂(3 Inch, Purity 99.99%) 타겟을 이용하여 유리기판(Corning 1747, 3 × 3 cm²)에 증착하고 선행보고된 IGZO 100 nm/Ni 5 nm 적층박막의 전기적, 광학적 특성과 비교하였다 [6]. 유리기판은 아세톤, 메탄올, 증류수의 순서로 초음파 세척을 실시하고 질소가스로 건조하였으며, RF 마그네트론 스퍼터링 조건은 Table 1에 나타내었다.

증착조건에 따른 박막의 가시광 투과도(400-700 nm)는 자외선-가시광 분광도계(UV-Visible spectrophotometer, Cary100 Cone, Varian, 측정오차 ± 0.1%)를 이용하여 다음 관계식[7]으로 분석하였다.

$$I_t = I_0 (1 - R)^2 \exp(-\alpha d) \quad (1)$$

I₀: 입사광선, R: 반사율, α: 흡수계수, d: 박막 두께.

전기적 특성평가는 Van der Pauw 방법을 이용한 Hall효과 측정기(HMS-3000, Ecopia)를 이용하여 전하농도와 이동도를 측정하였다. TiO₂ 완충층에 따른 결정구조 변화는 X선 회절분석기(Cu-Kα radiation 1.542Å, 40 kV, 25 mA, 20°-80°, X'pert PRO MRD, Philips, 한국기초과학지원연구원, KBSI 대구센터)로

**Fig. 1.** XRD pattern of IGZO single layer and IGZO/TiO₂ 5 nm bi-layered films.

측정하였으며, 표면형상과 표면거칠기(Root mean square roughness)는 원자간력현미경(Atomic force microscope, 측정영역 2 × 2 μm², 측정오차 ± 0.02 nm, XE-100, Park System)으로 분석하였다. TiO₂ 완충층에 따른 전기적, 광학적 특성 완성도는 Figure of Merit(FOM) 수치를 이용하여 고찰하였다.

3. 실험결과

Fig. 1은 IGZO 단층박막과 IGZO/TiO₂ 적층박막의 XRD 회절패턴 측정결과이다. 선행보고된 S. Kim의 IGZO/ZTO 박막의 특성연구[8] 및 Qun Zhang의 IGZO TFT소자의 산소 플라즈마 개질효과 [9] 와 같이 유리기판에 증착된 IGZO 박막의 Halo peak가 20°-40° 부근에서 나타났으며, TiO₂ 완충층의 회절피크 또한 검출되지 않아 본 연구에서 증착된 모든 박막은 비정질조직임을 알 수 있었다.

Fig. 2는 TiO₂ 완충층 적용에 따른 IGZO박막의 표면거칠기 측정결과이다. 거친 표면은 표시소자용 투명전극의 비저항 증가와 가시광 투과도 감소의 주요 원인이 되므로 표면거칠기는 디스플레이 소자수명에 중요한 부분이다. 본 연구에서 IGZO 단층박막의 RMS 거칠기는 1.5 nm이었으나, IGZO/TiO₂ 박막의 표면거칠기는 감소하여 Fig. 2(b)와 같이 1.3 nm의 RMS 거칠기가 측정되었다. 하부 완충층에 의한 상부 박막의 거칠기 감소는 앞서 보고된 IGZO/ZTO 박막의 전자빔 조사 효과 연구[7]와 유사한 결과로서

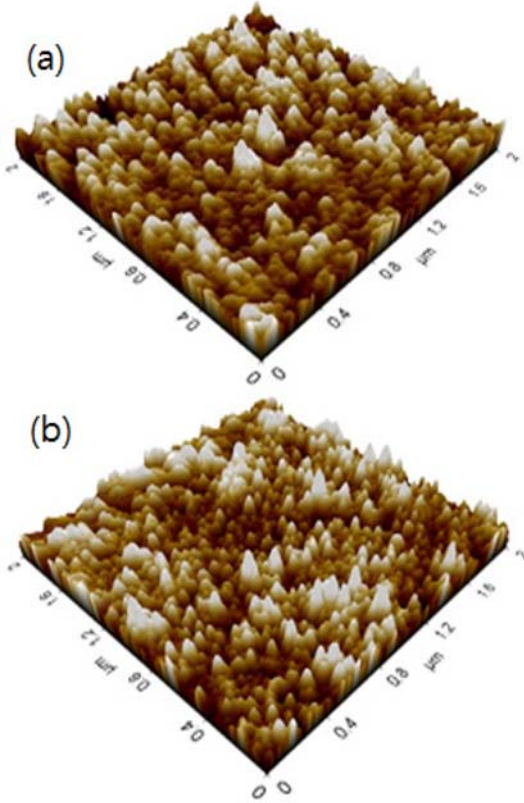


Fig. 2. Surface morphology and RMS roughness of the films. (a) IGZO film, RMS roughness; 1.5 nm, (b) IGZO/TiO₂ 5 nm film, RMS roughness; 1.3 nm.

진공증착 과정에서 TiO₂ 완충층이 기판의 결함지역에서 우선 성장하게 되어 거칠기가 감소된 것으로 사료된다.

TiO₂ 완충층 적용에 따른 IGZO 박막의 가시광 투과도 변화를 Fig. 3에 나타내었다. IGZO 박막의 가시광 투과도는 84.7%이고, IGZO/TiO₂ 박막의 가시광 투과도는 85.4%로 증가하였다. 이는 S. Kim의 GZO/ZnO 박막의 물성연구와 유사한 결과로서 ZnO 완충층에 의한 표면거칠기 감소로 인하여 표면 산란 및 흡수가 감소하기 때문에 가시광 투과도가 향상된 것으로 사료된다[10].

Table 2. Variation of electrical properties of IGZO single layer and IGZO/TiO₂ 5 nm bi-layered films (Error of measurement; $\pm 0.3\%$)

Film	Carrier density ($\times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)	Mobility ($\text{cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ S}^{-1}$)	Resistivity ($\times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$)
IGZO	4.98	4.1	3.05
IGZO/TiO ₂	5.35	4.5	2.58

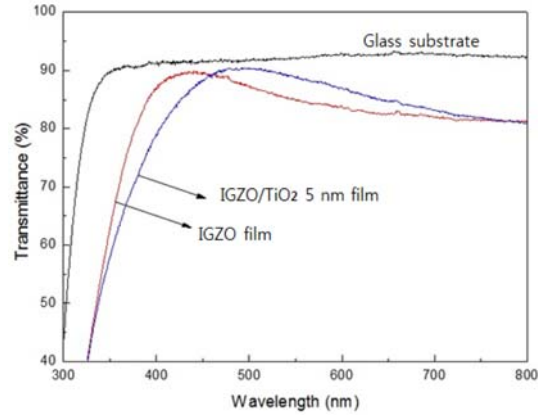


Fig. 3. Optical transmittance of IGZO single layer (a) and IGZO/TiO₂ 5 nm bi-layered films (b) in a wavelength of 300-800 nm.

Table 2에 TiO₂ 완충층 도입에 따른 IGZO 박막의 전기적 특성변화를 나타내었다. IGZO 단층박막의 전하농도, 이동도, 비저항은 각각 $4.98 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $4.1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, $3.05 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$ 로 측정되었으며, IGZO/TiO₂ 박막은 완충층에 의한 표면평탄화로 인하여 전하이동도가 $4.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 로 증가하였으며, 상대적으로 낮은 $2.58 \times 10^{-2} \Omega \text{ cm}$ 의 비저항이 측정되었다. 본 연구에서 제시된 IGZO/TiO₂ 박막의 비저항은 향후 진행될 전자빔 조사를 통한 표면개질을 실시할 경우, 보다 개선된 비저항 확보가 가능할 것으로 사료된다.

Fig. 4에 IGZO/TiO₂ 박막의 가시광 투과도와 광학적 밴드-갭(Optical energy band gap, E_g)의 관계를 나타내었다. 광학적 밴드-갭을 구하는데 필요한 박막의 흡수계수(α)는 식 (2)로 나타낼 수 있다[11].

$$\alpha = \ln(1/T) / d \quad (2)$$

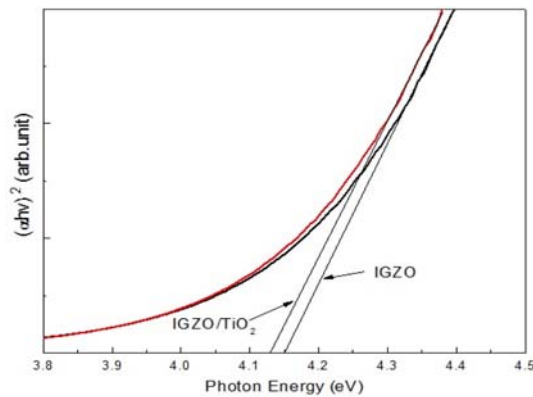
식 (1)에서 d 는 박막의 두께, T 는 투과도를 의미하며, 흡수계수와 광학적 밴드-갭의 관계[12]는 수식 (3)로 나타낼 수 있다.

$$(\alpha h\nu)^2 = A(h\nu - E_g) \quad (3)$$

식 (2)에서 A 는 IGZO와 같은 반도체 물질과 관

Table 3. Figure of merit of IGZO single layer, IGZO/TiO₂ 5 nm and GZO/Ni 5 nm bi-layered films

Film	Sheet resistance [Ω/\square]	Optical transmittance [%]	Figure of merit [$10^{-5}\Omega^{-1}$]	Reference
IGZO	3050	84.7	6.23	This study
IGZO/TiO ₂	2457	85.4	8.40	This study
GZO/Ni	73	65.2	18.0	6
IGZO	2400	84.8	8.01	7

**Fig. 4.** Optical band gap of IGZO single layer and IGZO/TiO₂ 5 nm bi-layered films.

런된 상수이며, h 는 Planck 상수, ν 는 광자의 진동수, E_g 는 광학적 밴드-갭을 나타낸다. Fig. 4에서 광학적 밴드-갭은 곡선영역에서 접선의 기울기를 그어 $(\alpha h\nu)^2=0$ 되는 지점의 수치이다. IGZO 박막의 광학적 밴드-갭은 4.15 eV이었고, IGZO/TiO₂ 적층박막은 4.13 eV로 감소하였다. 이와 같은 광학적 밴드-갭 감소는 선행보고된 ZnO/CuSn/ZnO 적층박막의 가시광 특성[13]과 유사한 결과로서, Fig. 3과 같이 TiO₂ 완충층에 의한 전하농도($5.35 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$) 증가로 IGZO 박막의 가시광 흡수단(Absorption edge) 장파장영역 이동현상(Red-shift)에 의한 것으로 사료된다.

Figure of Merit(FOM)은 TCO 박막의 전기적, 광학적 물성을 비교할 수 있는 척도로서 관련 수식은 다음과 같다.

$$\text{FOM} = T^{10} / R_{\text{sh}} \quad (4)$$

위 수식에서 T 는 평균 가시광투과도, R_{sh} 는 면저항을 의미한다[14]. 일반적으로 투명전극 소재의 가시광 투과도와 전기전도도는 반비례 관계를 갖기 때문에 적절한 가시광 투과도와 면저항의 선택적인 제어가 필요하다.

Table 3는 IGZO 100 nm, IGZO 100 nm/TiO₂ 5 nm 그리고 GZO 100 nm /Ni 5 nm [6] 적층박막의 FOM 비교결과이다. IGZO 박막의 FOM 수치는 $6.23 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ 이었으나, IGZO/TiO₂ 박막의 FOM 수치가 $8.40 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ 로 증가함으로써, TiO₂ 완충층이 IGZO 박막의 전기적, 광학적 완성도를 개선함을 알 수 있었다. 또한 IGZO/TiO₂ 박막이 선행보고된 GZO/Ni 적층박막 보다 우수한 평균 가시광 투과도를 보임으로써 금속완충층 도입보다 금속산화물 완충층 도입에 의한 투과도 개선효과를 알 수 있었다.

4. 결 론

RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 유리기판에 IGZO/TiO₂ 박막을 증착하고, TiO₂ 완충층에 의한 박막의 전기적, 광학적 특성 변화를 고찰하였다. X선 회절분석에서 TiO₂ 완충층에 의한 IGZO 박막의 결정화는 측정되지 않았으나, 전하농도 및 이동도의 증가로 IGZO/TiO₂ 박막의 비저항이 감소하였으며, 평균 가시광 투과도 또한 증가함을 알 수 있었다.

IGZO 박막의 FOM 수치는 $6.23 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ 이었으나 IGZO/TiO₂ 박막에서 $8.40 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ 로 증가하여 TiO₂ 완충층에 의해 IGZO 박막의 전기적, 광학적 완성도가 향상됨을 알 수 있었다.

Acknowledgement

이 논문은 교육부와 한국연구재단의 지역혁신창의 인력양성사업의 지원을 받아 수행된 연구임(No. NRF-2013H1B8A2032122).

References

1. Y. J. Lee, S. B. Heo, H. M. Lee, Y. S. Kim and D.

- Kim : J. Kor. Soc. Heat Treat. **25** (2012) 244.
2. S. Song, T. Yang, J. Liu, Y. Xin, Y. Li and S. Han : Appl. Surf. Sci. **257** (2011) 7061.
 3. N. Tiwari, H. P. D. Shieh and P. T. Liu : Mater. Lett. **151** (2015) 53.
 4. S. Y. Kim, S. K. Kim, S. H. Kim, J. H. Jeon, T. K. Gong, D. I. Son, D. H. Choi and D. Kim : J. Kor. Soc. Heat Treat. **27** (2014) 175.
 5. H. Hsu, C. Chang, C. Cheng, S. Chiou and C. Huang : IEEE Electron Dev Lett **35** (2014) 87.
 6. J. H. Jeon, T. K. Gong, S. K. Kim, S. H. Kim, S. Y. Kim, D. H. Choi, D. I. Son and D. Kim : J. Alloys and Compd. **639** (2015) 1.
 7. 김승홍 : 전자빔 조사 효과에 따른 IGZO/ZTO 적층 박막의 전기적, 광학적 물성 연구, 울산대학교 석사 학위논문 (2014).
 8. S. Kim and D. Kim : Ceram. Int. **41** (2015) 2770.
 9. H. Pu, Q. Zhou, L. Yue and Q. Zhang : Appl. Surf. Sci. **283** (2013) 722.
 10. S. Kim, S. Kim, S. Kim, J. Jeon, T. Gong, D. Kim, D. Yoon, and D. Choi : Trans. Electr. Electron. Mater. **15** (2014) 198.
 11. J. Tanc : Amorphous and Liquid Semiconductor, Plenum, New York, 1974.
 12. P. Prepelita, V. Craciun, F. Garoi and A. Stacu : Appl. Surf. Sci. **352** (2015) 23.
 13. D. Kim, Displays **31** (2010) 155.
 14. G. Haacke : J. Appl. Phys. **47** (1976) 4086.