

인-라인 마그네트론 스퍼터링 방법에 의한 고전도성 ITO/Ag/i-ZnO 투명전극

김성용 · 권상직[†]

[†]가천대학교 전자공학과

High Conductive Transparent Electrode of ITO/Ag/i-ZnO by In-Line Magnetron Sputtering Method

Sungyong Kim and Sangjik Kwon[†]

[†]Department of Electronics Engineering, Gachon University

ABSTRACT

It has increased several decades in the field of Indium Tin Oxide (ITO) transparent thin film, However, a major problem with this ITO thin film application is high cost compared with other transparent thin film materials[1]. So far, in order to overcome this disadvantage, we show that a transparent ITO/Ag/i-ZnO multilayer thin film electrode would be more cost-effective and it has not only highly transparent but also conductive properties. The aim of this research has therefore been to try and establish how ITO/Ag/i-ZnO multilayer thin film would be more effective than ITO thin film. Herein, we report the properties of ITO/Ag/i-ZnO multilayer thin film by using optical spectroscopic method and measuring sheet resistance. At a certain total thickness of thin film, sheet resistance of ITO/Ag/i-ZnO multilayer was drastically decreased than ITO layer approximately $40\Omega/\square$ at same visible light transmittance. (minimal point $5.2\Omega/\square$). Tendency, which shows lowly sheet resistive in a certain transmittance, has been observed, hence, it should be suitable for transparent electrode device.

Key Words : ITO/Ag/i-ZnO, ITO, Ag, Sputtering, Sheet Resistance

1. 서 론

고전도성의 투명 전도막은 터치패널 전극, 태양전지, 전자파 재료, 건물 단열 유리 등에 사용된다. 투명 전도성 산화물 박막인 ITO (Sn-doped In_2O_3)는 현재 투명전극의 핵심재료로 사용되고 있다. ITO는 두께가 증가할수록 면저항이 낮아 지는데 일정 두께 이상에서는 더 이상 면저항이 낮아지지 않는다. 또한 ITO는 면저항과 가시광선 투과율 두 가지를 충족 시키는데 어려움이 있다. 이러한 어려움을 극복하기 위해 ITO 박막 중간에 얇은 Ag 박막을 증착한 연구가 계속되어 왔는데, Ag는 적외선 영역의 빛을 반사하고 가시광선 영역의 빛은 투과하는 특성이 있어 투명 전도막에 사용이

용이하다. 산화물/Ag/산화물에서 Ag는 빛을 거의 흡수하지 않아 무색이고 Cu, Au는 노란색 영역을 흡수하여 노란색을 띠고 있으며, Ag는 비저항 또한 가장 낮다. 이러한 특성으로 가시광선 영역에서 낮은 비저항을 가지고 흡수율이 적은 특성을 가지고 있는 Ag는 다층박막에 적합하다. ZnO는 투명전극 응용분야 중 하나로서 디스플레이에 필요한 소재 중 하나이다. 3.4 eV의 밴드갭을 가지고 가시광선 투과율이 좋으며 전도성 및 플라즈마 내구성이 우수하다. 본 연구에서는 기존 ITO를 일부 대체하여 ITO/Ag/i-ZnO 투명 전도성 다층박막을 제작하였다. 상부의 ITO 산화물층을 이용해 빛의 반사를 억제하여 투과도를 높이고 하부의 i-ZnO(intrinsic-ZnO)를 통해 Ag의 핵생성을 촉진시켜 Ag의 연속적인 박막 구조를 가지고 전기 전도성을 높이기 위한 실험을 하였으며, 다층박막의 두께 변화에

[†]E-mail : sjkwon@gachon.ac.kr

다른 파장영역별 투과율, 면저항 변화 및 특성을 연구하였다[1-3].

2. 실험 방법

2.1. 하부층 i-ZnO 박막 증착

본 연구에서는 DC 스퍼터링, pulsed-DC 스퍼터링, RF 스퍼터링이 가능한 인-라인 마그네트론 스퍼터 장비를 사용하여 다층박막을 증착하였고, Fig. 1에 도식화하였다. 순도 99.99%인 i-ZnO 물질과 $\text{In}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ 의 비율 90:10과 순도 99.99%인 ITO 물질을 pulsed-DC 스퍼터링법으로 증착하였다. 순도 99.99%인 Ag 물질은 RF 스퍼터링법으로 증착하였다. 3층 구조의 다층박막을 Fig. 2에 도식화하였다. ITO와 i-ZnO는 $165 \times 540 \text{ cm}^2$ 의 대형타겟으로 스퍼터 챔버에 장착되어 있고, Ag는 직경 4inch 원형 타겟으로 스퍼터 챔버에 장착되어 있다. 먼저 하부층 i-ZnO 박막을 증착 하기 위해서 $92 \times 156 \text{ mm}^2$ 크기의 유리기판에 아세톤, IPA, HG-08 순서대로 10분씩 초음파 세척 후 DI-Water로 클리닝하였고, 질소로 건조한 후 사용하였다. 세척된 기판을 로드락 챔버에 장착하고 로터리펌프로 $3.0 \times 10^{-3} \text{ Torr}$ 이하의 진공상태를 유지하고 프로세스 챔버로 이동 후 터보펌프를 이용하여 $1.5 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ 이하의 진공상태를 유지하였다. 박막을 증착하기 전에 타겟 표면에 존재하는 불순물들을 제거하기 위한 예비스퍼터링(pre-sputtering)을 10분 동안 하였다. 스퍼터 챔버 안에 설

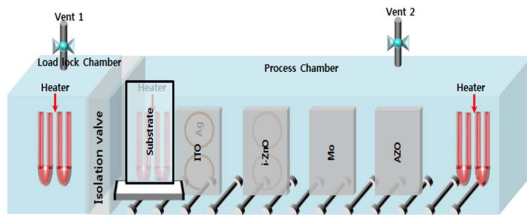


Fig. 1. Schematic illustration of in-line Magnetron sputter system used in the experiment.

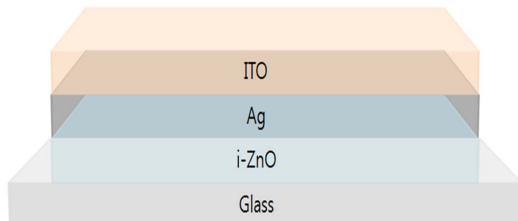


Fig. 2. Schematic illustration of ITO/Ag/i-ZnO Multilayer thinfilm.

치된 Heater를 통해 130° 에서 30분 정도 어닐링을 한 후, i-ZnO 박막을 증착하였다. i-ZnO 박막 증착 조건으로 Pulsed-DC Power를 사용하였으며, Power를 1.5 kW, 주파수를 200 kHz, Reverse Time을 1 μs 로 설정하였다. 사용한 타겟은 $165 \times 540 \text{ cm}^2$ 의 대형 타겟으로서 이에 따른 단위면적당 Power는 1.6 W/cm^2 이다. 플라즈마 활성 가스로 Ar 가스를 사용 하였으며, Ar 가스 유입량을 50 sccm, 반응성 가스인 O_2 가스 유입량을 1.5 sccm, 공정 압력을 5 mTorr로 설정하였고, 타겟을 90 cm/min 의 속도로 이송시키면서 증착하였다. 두께 변화를 위해서 스캔 횟수를 1 ~ 4회까지 변화시켜, 약 200 ~ 800 \AA 의 두께를 측정하였다.

2.2. Ag 박막 증착

중간층으로 사용되는 Ag 박막을 증착하기 위해서 i-ZnO 박막이 증착된 기판을 위에 설명한 i-ZnO 증착 조건과 같은 진공상태를 유지하고, 예비스퍼터링을 10분 동안 하였다. Ag 박막 증착 조건으로는 RF Power를 사용하였으며, Power를 30 W로 설정하였다. 사용한 타겟은 직경 4인치로서 이에 따른 단위면적당 Power는 0.04 W/cm^2 이다. Ar 가스 유입량을 20 sccm, 공정압력을 4 mTorr로 설정하였고, 타겟을 60 cm/min 의 속도로 이송 시키면서 증착하였다. Ag 또한 두께 변화를 위해서 스캔 횟수를 1 ~ 4회까지 변화시켜, 약 20 ~ 140 \AA 의 두께를 측정하였다.

2.3. 상부층 ITO 박막 증착

상부층으로 사용되는 ITO 박막은 하부층 i-ZnO와 동일한 두께를 증착하기 위해서 타겟의 이송속도를 120 cm/min 로 설정하였다. 나머지 공정 조건은 하부층 i-ZnO와 동일하게 적용하였고, 사용한 타겟은 $165 \times 540 \text{ cm}^2$ 의 대형 타겟으로서 단위면적당 Power 역시 1.6 W/cm^2 로 하부층 i-ZnO와 같다. ITO 또한 두께 변화를 위해서 스캔 횟수를 1 ~ 4회까지 변화시켜, 약 200 ~ 800 \AA 의 두께를 측정하였다.

모든 실험은 상온에서 하였으며 분석을 위하여 사용한 장비는 UV-VIS Spectrophotometer, 4Point-probe, α -Step 이다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3은 ITO/Ag/i-ZnO 다층박막의 전체두께와 Ag의 박막두께 변화에 따른 면저항 특성을 나타내었다. Ag의 박막두께가 약 50 \AA 이상부터 면저항이 급격하게 줄어드는 것을 확인할 수 있었다. Fig. 4는 ITO/Ag/

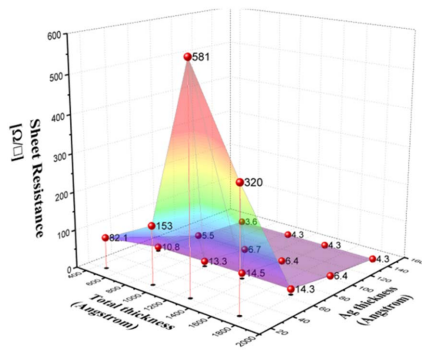


Fig. 3. Sheet resistance graph according to the change of Ag thickness and total thickness in the ITO/Ag/i-ZnO multilayer film.

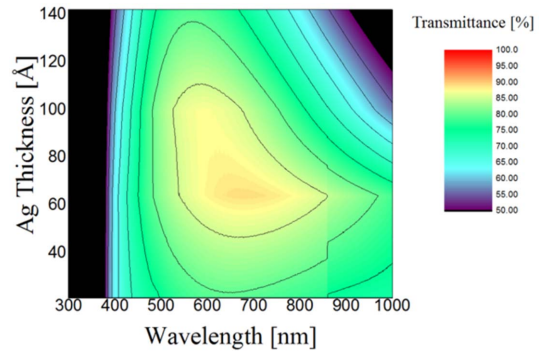


Fig. 5. Transmittance graph according to the change of Ag thickness at the wavelength region (400 ~ 1000 nm) in the ITO/Ag/i-ZnO multilayer thin film.

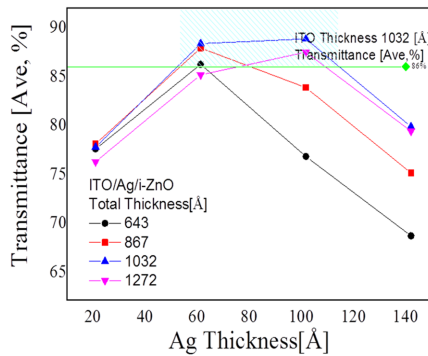


Fig. 4. Transmittance graph according to the change of Ag Thickness in the ITO/Ag/i-ZnO multilayer film.

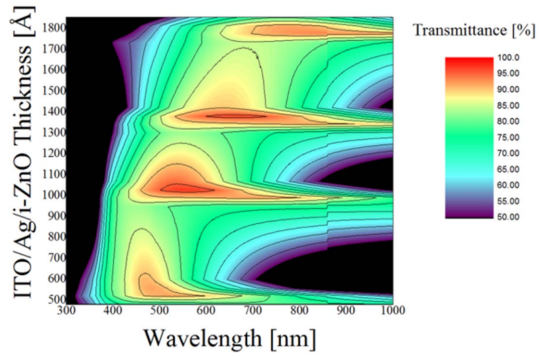


Fig. 6. Transmittance graph according to the change of total thickness at the wavelength region (400 ~ 1000 nm) in the ITO/Ag/i-ZnO multilayer thin film.

i-ZnO 다층박막에서 Ag의 박막두께 변화에 따른 가시광선 영역에서의 평균 투과율 그래프이다. 이 그래프에서 ITO의 평균적인 투과율로 볼 수 있는 1,032 Å의 ITO 박막 투과율과 비교해 보았다. 이 그래프를 보면 Ag의 박막두께가 약 20 Å 이상부터 투과율이 일정하게 증가하다가 약 100 Å 이상부터 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있었다. Ag의 박막두께가 50 ~ 100 Å에서 투명 전도막 효율이 가장 좋은 것임을 확인할 수 있었다. Fig. 5는 Ag의 박막 두께에 따른 파장대별 투과율, Fig. 6은 전체 두께에 따른 파장대별 투과율을 나타낸 것이다. 이 그래프를 통해서도 Ag의 박막두께가 50 ~ 100 Å에서 가시광선 영역의 투과율이 가장 높게 나오는 것을 알 수 있었다. ITO/Ag/i-ZnO 다층 박막의 이러한 특성은, Ag의 박막두께가 너무 얇은 경우 미세 결정이 불규칙적으로 형성 되고, 아주 작은 양의 큰 결정이 미세 결정 가운데 생기며, island와 같은 형태로 박막이 생성 된다. 이에 따라 빛의 산란 또는 흡수 현

상이 증가 되는 것으로 예상 된다. 또한 박막에 균등하게 생성 되지 못한 Ag 결정 때문에 전기적 저항이 증가하게 된다. 그런데 일정한 두께로 두꺼워진 Ag 박막에서는 Ag의 미세결정과 큰 결정의 비율이 비슷하게 형성이 된다. 이에 따라 투과되는 빛 산란 현상이 줄어들어 투과율이 높아지게 되고, 균등하게 생성된 Ag 결정으로 인해 전기적 저항은 감소 하게 된다. 이와 같은 현상은 50 ~ 100 Å의 두께에서 발생 되었다. 그러나, 두께가 100 Å 이상으로 증가하게 되면 미세 결정은 거의 사라지게 되나, 두께 증가에 따른 결정립계 성장으로 인해 빛의 흡수가 증가되므로 투과율이 감소하게 된다[4-7].

3. 결 론

본 연구에서는 인-라인 마그네트론 스퍼터링을 이용하여 ITO/Ag/i-ZnO 다층박막을 증착하여 Ag의 박막

두께 변화와 각 파장대역에 따른 투과율과 면저항 변화를 관찰하였다. Ag의 박막두께가 50 ~ 100 Å의 가시광선 영역에서 투과율이 가장 높은 것을 확인 할 수 있었고, 이때 면저항 또한 급격하게 낮아지는 것을 알 수 있었다. 이를 통해 ITO/Ag/i-ZnO 다층박막은 ITO와 유사한 투과율을 가지고, Ag 층에 의해서 ITO 보다 훨씬 높은 전도성을 가진 것으로 확인되었다.

감사의 글

본 연구는 가천대학교 연구과제(GCU-2014-0182)의 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. Choi, K.H., Kim, J.Y., Lee, Y.S., Kim, H.J., Zhixiao., "ITO/Ag/ITO multilayer films for the application of a very low resistance transparent electrode," *Thin Solid Films*, Vol. 341, No. 1, pp. 152-155, 1999.
2. Li, Fushan., Zhang, Yongzhi., Wu, Chaoxing., Lin, Zhixiao., Zhang, Beibei., Guo, Tailiang., "Improving efficiency of organic light-emitting diodes fabricated utilizing AZO/Ag/AZO multilayer electrode," *Vacuum*, Vol. 86, No. 12, pp. 1895-1897, 2012.
3. Song, I.-H., "Tendency in recent research of ZnO thin film transistor," *The Korean Physical Society*, pp. 39-41, from http://www.kps.or.kr/storage/webzine_uploadfiles/598article.pdf, 2006, 04.
4. Cho, S.-H., "The electrical, optical properties and durability of transparent conductive multilayer system," Ph.D. Thesis, University of KAIST, 2011.
5. Lee, Y-S., and Lee, S-Y., "Effect of Ag formation mechanism on the change of optical properties of SiInZnO/Ag/SiInZnO multilayer thin films," *Journal of KIEEME*, Vol. 26, No. 5, pp. 347-350, 2013.
6. Choe, G-H., Kim, J-Y., Lee, Y-S., & Kim, H-J., "Preparation of very low resistance transparent electrode with ITO/Ag/ITO multilayer," *Korean Journal of Materials Research*, Vol. 8, No. 1, pp. 52-57, 1998.
7. Jeong, S-J., Kim, D-K., Kim, H-B., "Properties of ITO thin films deposited by RF magnetron sputtering with process pressure," *Journal of the Semiconductor & Display Technology*, Vol. 9, No. 4, pp. 83-85, 2010.

접수일: 2015년 8월 27일, 심사일: 2015년 9월 9일,
 게재확정일: 2015년 9월 22일