반도체디스플레이기술학회지 제16권 제1호(2017년 3월)
Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 16, No. 1. March 2017.

FTS장치를 이용한 다양한 공정 조건에서 제작한 ITO 박막의 특성 분석

김상모[*]·금민종[**]·김경환[*†]
[*†]가천대학교 전기공학과, [**]주성엔지니어링

Characteristics of ITO thin Films Grown under Various Process Condition by Using Facing Target Sputtering (FTS) System

Sangmo Kim[*], Min Jong Keum[**] and Kyung Hwan Kim[*†]
[*†]Dept. of Electrical Engineering, Gachon University
[**]Jusung Engineering Co., Ltd.

ABSTRACT

ITO thin films were grown on the glass substrate under various oxygen gas flow and substrate temperature by using FTS (Facing Target Sputtering) system. To investigate properties of as-prepared films for transparent electrical devices, we employed four-point probe, UV-VIS spectrometer, X-ray diffractometer (XRD), scanning electron microscopy (SEM), Hall Effect measurement system and Atomic Force Microscope (AFM). As a results, all of prepared samples has high transmittance of over 80 % in the visible range (300-800 nm). Their resistivity increased as a function of oxygen gas flow and substrate temperature due to their crystal structure and oxygen defect in the films. As-prepared films have a resistivity of under 10^{-4} (Ω-cm).

Key Words : FTS, ITO, oxygen, substrate temperature

1. 서 론

최근에 CRT를 대체할 LCD, PDP, OLED 등과 같은 평판 디스플레이 분야의 급속한 발전으로 인해 투명전자 소자의 투명전극인 TCOs (transparent conducting oxides) 물질에 대한 관심이 커지고 있다. 지금까지 TCO 물질로써 가장 넓이 쓰이는 Indium Tin Oxide (ITO)은 가시광 영역 (300-800nm)에서 광투과도가 높고 근적외선 영역에서는 광 반사도가 높을 뿐만 아니라 낮은 저항값을 가지고, 화학적 안정성이 뛰어나 태양전지, 광센서 등의 다양한 분야에 응용되고 있는 물질이다 [1-3].

ITO 박막의 제조방법에는 Spary법, Sol-gel법, CVD, thermal evoporation, sputtering법이 등이 있다. 다양한 방법 중에 마그네트론 스퍼터링법은 대면적 증착이 가능하고, 균일한 박막이 가능한 장점이 있다. 스퍼터링을 이용한 박막 증착 조건에는 인가전력, 작업압력, 증착온도, 산소분압 등과 같은 공정변수가 있으면, 이러한 조건들을 적절히 조절해야만 고품질의 박막을 얻을 수 있다. 특히 기판 온도 및 산소분압은 기판위에 박막 형성 과정에서 가장 많은 영향을 미치는 요소이며, 특히 ITO 박막은 200℃ 이상의 기판가열이 필요하다고 보고되고 있다 [3-4].

본 연구에서는 두 개의 타겟이 서로 마주 보고 있고, 박막이 증착되는 기판은 두 타겟의 중앙에 생성되는 플라즈마와 이격되어진 위치에 놓여, 고에너지 입자에 의한 기판 손상 및 박막의 손상을 최소화할 수 있다 [5-6]. FTS 장치를 이용하여 다양한 기판온도 및 산소분압 조건에서 ITO 박막을 증착하고, 박막 특성을 분석하였다.

[†]E-mail: khkim@gachon.ac.kr

2. 실험 방법 및 측정

2.1 박막 제작 장치

본 실험에서는 Fig. 1과 같은 구조의 대향 타겟식 스퍼터링 (Facing targets sputtering, FTS) 장치를 사용하여 ITO 박막을 증착하였다. 일반적인 마그트론 스퍼터링 장치는 기판의 위치가 플라즈마에 노출되기 때문에 고에너지입자들이 기판과 충돌로 인한 막 손상이 발생되어 고품위 박막 제작에는 한계가 있다 [4-6]. 그러나 본 연구에서 사용된 FTS 장치는 기판의 위치가 방전된 플라즈마에서 이격되어 있어서 고에너지입자들의 막 충돌을 억제 시킬 수가 있다. 또한 서로 마주 보고 있는 두 타겟의 음전극 전위로 인해 λ-전자는 두 타겟 사이를 왕복 운동하게 되며, 분위기 가스의 이온화 율을 높이게 된다. 따라서 1mTorr 이하의 낮은 가스압에서도 안정적인 방전을 유지하여 고품질의 박막 제작이 가능하다 [5-6].

ITO 박막 제작시에는 Fig. 1과 같이 두 타겟 사이에 방전 플라즈마가 균일한 형태를 가지는 분산형 자계 분포를 가지는 대향 타겟식 스퍼터링을 이용하였다.

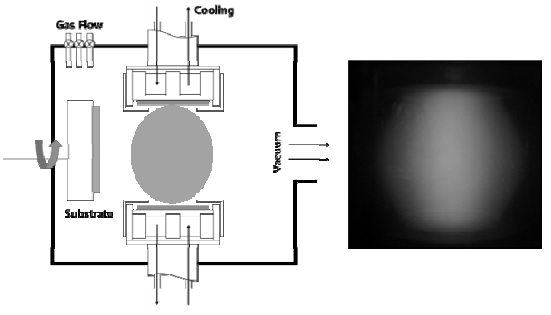

Fig. 1. Schematic diagram of Facing Targets Sputtering (FTS) system [5-6] and discharge plasma photo image.

2.2 실험 방법 및 측정

샘플 제작 전에 기판 세척을 다음과 같이 진행하였다. Acetone, Isopropyl alcohol (IPA), deionized water을 이용하여 순서대로 각각 10분씩 초음파 세척하였다. 그리고 N_2로 기판 표면에 남아있는 이물질을 제거하고 드라이 오븐 80℃에서 건조시켜서 준비하였다.

진공챔버 내의 전체 압력은 Rotary pump 저진공 펌프와 Turbo molecule pump (TMP) 고진공 펌프를 이용하여 고진공 상태를 유지하였다. 박막 증착 전에는 타겟 및 진공 챔버 내의 이물질을 제거하기 위해서 1 mTorr, 20W에서 Pre-sputtering을 10분간 실시하였다. 자세한 박막의 스퍼터링 조건은 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Sputtering conditions

Parameter	Conditions
Targets	ITO targets (In_2O_3 : SnO_2 = 90 : 10 wt%)
Substrate	Soda-lime glass (25×75 mm)
D_{T-T} / D_{T-S}	100 mm / 100 mm
Bass pressure	2.6×10^{-6} Torr
Working pressure	1 mTorr
Film Thickness	100 nm
Input power	100 W
Gas ratio	Ar : 10 sccm, O_2 : 0-0.3 sccm
Sub. Temperature	100-500ºC

*D_{T-T}: 두 타겟 간의 거리, *D_{T-S}: 타겟과 기판 간의 거리

제작된 박막의 특성은 Four-point probe (CMT-SR1000N), UV-Vis spectrometer (HP8453), X-ray Diffraction (Rigaku D/MAX-2200, λ = 1.54056 Å, 40 kV, 20 mA)을 통해서 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 기판 온도 및 산소 유량비에 따라 증착한 ITO 박막의 전기적 특성을 나타낸 것이다. ITO 박막은 Sn^{4+} 이온에 의한 In^{3+}이온 자리에 치환되거나, In_2O_3 자리에 산소 공공 자리에 칩입형 산소가 들어가면서 전자가 이동하게 된다. 기판 온도가 증가하게 되면 Sn^{4+} 이온의 In^{3+} 이온과 치환되는 양이 증가하여 비저항값의 감소 및 캐리어 농도의 증가, 이동도의 증가하게 된다 [5-7]. 또한 산소 가스 유량이 증가하게 된다. 하지만, 기판 온도 500℃에서 제작된 박막은 투입된 산소유량과 관계 없이 다른 박막보다 낮은 저항값을 가지고 있음을 확인하였다. 그리고 Fig. 2(c)와 3(c)에서 500℃에서 케리어 농도가 급격히 감소하였으며, 에너지 밴드갭도 증가하였다. 따라서 투입된 산소량과 기판 온도가 증가할수록 전기적인 특성은 향상됨을 확인하였다.

Fig. 3은 기판온도 및 산소 투입량에 따른 가시광선영역에서 광투과율과 밴드갭을 나타내었다 [3-6]. 산소 가스 투입량이 증가함에 따라서 증착된 ITO 박막의 광투과율은 증가하였다.

또한 산소 가스 투입량이 증가하게 되면 ITO 박막의 결정이 우수해지고, 입자의 크기가 증가하여 표면에서 광흡수 및 산란이 감소하기 때문이다. 하지만 기판온도가 증가하게 되면 오히려 광투과율이 감소하게 됨을 확인하였다. 이것은 불순물 도핑농도에 의한 광학적 밴드갭은 Burstein-Moss (BM) shift로 설명된다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 기판 온도가 증가하고, 산소 가스 유량이 증가할수록 가

시광선 영역에서의 광투과도가 높아지고, 자외선영역에서의 absorption edge가 짧은 파장으로 이동되고 있음을 볼 수 있다. 이것은 기판 온도의 상승으로 인하여 박막의 결정화가 향상되었고, 전자의 농도가 증가하여 BM shift된 것으로 사료된다 [8-10]. 또한 Fig. 2와 3에서 온도가 증가할 수록 에너지 갭이 증가하여 전기적 특성이 개선되었다. 박막 증착 과정에서 산소 유량이 많을수록 그리고 온도가 증가할수록 결정성이 높아지지만, 가시광선 영역에서의 광투과도는 낮아진다는 것을 알 수 있다. 이것은 온도와 산소 유량에 따라서 박막의 결정성이 향상되지만, 결정면에서 빛의 산란 때문에 오히려 감소한 것으로 사료된다.

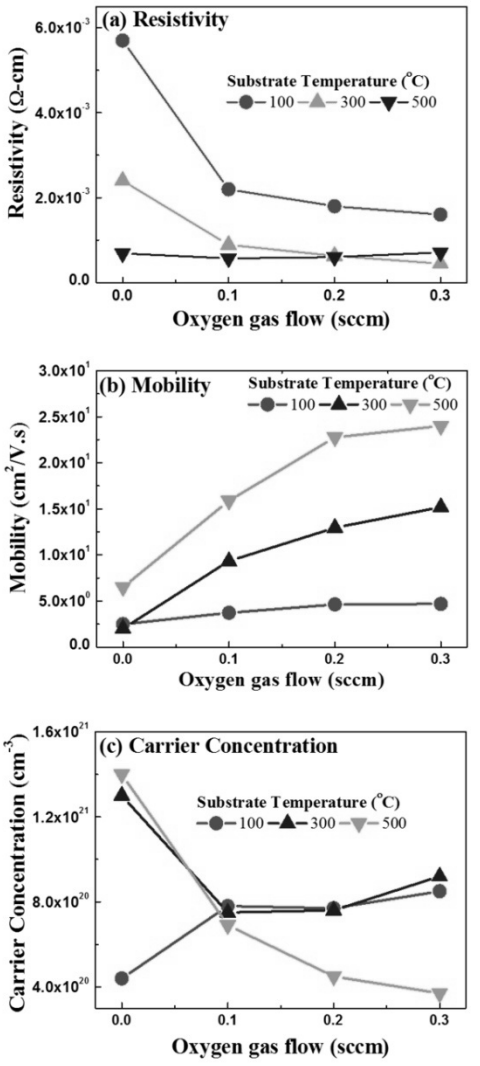

Fig. 2. Resistivity, mobility, and carrier concentration of as-prepared ITO films.

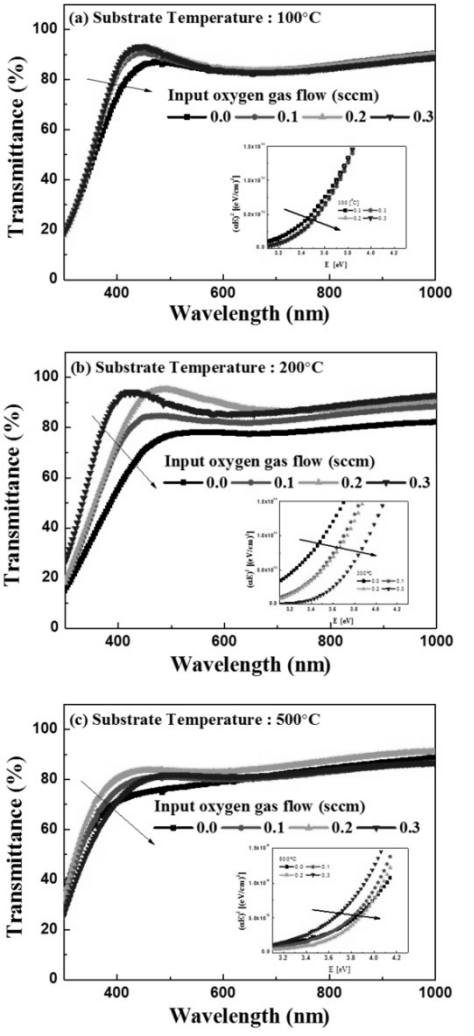

Fig. 3. Transmittance and energy bandgap (insert images) of ITO films prepared as a function of substrate temperature and oxygen gas flow; (a) 100℃, (b) 200℃, and (c) 500℃.

Fig. 4는 기판 온도 및 산소 분압에 따른 FE-SEM 사진을 나타낸 것이다. 기판 온도 및 산소 분압에 증가(0.0-0.3sccm)함에 따라 입자의 크기 증가함을 알 수 있다. 이것은 박막의 성장 모델을 바탕으로 기판의 온도 및 산소 가스유량비가 증가함에 따라서 ITO 박막의 입자의 크기 커지게 되는데, 이것은 투입된 산소가 ITO 박막 내에서 산소공공자리를 차지며, Carrier 농도를 감소시키며, 따라서 비저항값을 가져온다. 또한 온도의 증가와 함께 박막 내부의 In_2O_3의 석출을 가져옴으로써 ITO 박막의 전기적 특성을 감소시키는 영향을 준다 [8-10].

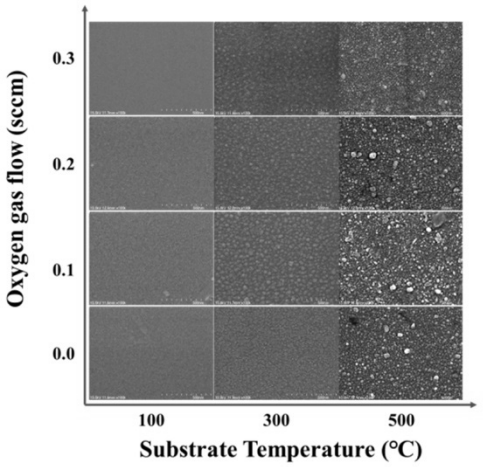

Fig. 4. FE-SEM images of as-prepared ITO films as a function of substrate temperature and oxygen gas flow.

4. 결 론

본 연구에서는 분산형 자계 분포를 가지는 FTS 스퍼터링 장치를 이용하여 ITO 투명전도성 박막을 제작하였다. ITO 박막 제작 시 기판 온도 및 산소 가스 유량에 따라서 두께 100 nm로 제작하였다. 산소 유량과 기판 온도에 따라서 제작된 박막의 광학적 및 전기적 특성은 향상에 기여하였다. 하지만 기판 온도 500도에서 제작된 샘플은 광투과율이 감소하였다. 이것은 기판 온도에 의한 결정성 향상에 따른 결정면에서의 빛의 산란에 의해서 발생된 것으로 사료된다.

따라서 ITO 박막 제작 시에는 기판 온도 300도, 산소 유량 0.2 sccm 이상에서 제작되어야 하고, 제작된 샘플은 가시광선 영역에서 광투과율 90 %, 비저항값은 6.4×10^{4} [Ω-cm]을 가지는 우수한 투명전도성 ITO 박막을 제작하였다.

감사의 글

본 연구는 2016년도 산업통상부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. *(No. 20153010012090)*

참고문헌

1. 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, 2003.
2. H. Hosono, H. Ohta, M. Orita, K. Ueda, and M. Hirano, “Frontier of transparent conductive oxide thin films”, Vacuum, 66, pp. 419-425, 2002.
3. J. W. Ko, B. Y. Jung, and T. Oh, “Annealing Effect with Various Ambient Conditions of ITO Thin Film”, Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 14, No. 4, pp. 20-24, 2015.
4. S. Kim and S. Kwon, “High Conductive Transparent Electrode of ITO/Ag/i-ZnO by In-Line Magnetron Sputtering Method”, Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 14, No. 3, pp. 33-36, 2015.
5. M. J. Keum and K. H. Kim, “Transparent Conductive Thin Film for Top Emitting Organic Light Emitting Diodes by Sputtering Method”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 45, No. 10B, pp. 8462-8465, 2006.
6. K. Tominaga, T. Ueda, T. Ao, A. Katkoka, and I. Mori, "ITO films prepared by facing target sputtering system", Thin Solid Films, 194, pp. 281-282, 1996.
7. C. S. Cho, S. H. Yun, B. H. Kim, K. T. Kim, Y. C. Jung, and J. H. Lee, “Development of rotary-magnet type magnetron source for large area sputtering on flexible substrate”, Journal of the Semiconductor & Display Technology, Vol. 11, No. 2, pp. 1-6. 2012.
8. K. H. Kim, I. H. Son, K. B. Song, S. H. Kong, M. J. Keum, S. Nakagawa, and M. Naoe, “Thin film properties by facing targets sputtering system” Applied Surface Science, Vol. 169-170, pp. 410-414, 2001.
9. A. Eshaghi, M. J. Hakimi, and A. Zalib, “Fabrication of titanium zinc oxide (TZO) sol-gel derivednanostructured thin film and investigation ofits optical and electrical properties”, Optik, Vol. 126, pp. 5610-5613, 2015.
10. 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.

접수일: 2017년 3월 21일, 심사일: 2017년 3월 24일,
게재확정일: 2017년 3월 27일