

## 기판 인가 전압에 따른 IWO 박막의 전기적, 광학적 특성

최재욱<sup>1,2</sup> · 이연학<sup>1</sup> · 박민성<sup>1</sup> · 공영민<sup>1</sup> · 김대일<sup>1†</sup>

<sup>1</sup>울산대학교 첨단소재공학부, <sup>2</sup>한국생산기술연구원 동남본부 첨단하이브리드생산기술센터

### Influence of Substrate Bias Voltage on the Electrical and Optical Properties of IWO Thin Films

Jae-Wook Choi<sup>1,2</sup>, Yeon-Hak Lee<sup>1</sup>, Min-Sung Park<sup>1</sup>, Young-Min Kong<sup>1</sup>, and Daeil Kim<sup>1†</sup>

<sup>1</sup>School of Materials Science and Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44776, Republic of Korea

<sup>2</sup>Korea Institute of Industrial Technology, Yangsan 50635, Republic of Korea

(Received July 14, 2023 : Revised September 14, 2023 : Accepted September 15, 2023)

**Abstract** Transparent conductive tungsten (W) doped indium oxide ( $\text{In}_2\text{O}_3$ ; IWO) films were deposited at different substrate bias voltage ( $-V_b$ ) conditions at room temperature on glass substrates by radio frequency (RF) magnetron sputtering and the influence of the substrate bias voltage on the optical and electrical properties was investigated. As the substrate bias voltage increased to  $-350 V_b$ , the IWO films showed a lower resistivity of  $2.06 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ . The lowest resistivity observed for the film deposited at  $-350 V_b$  could be attributed to its higher mobility, of  $31.8 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  compared with that ( $6.2 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) of the films deposited without a substrate bias voltage ( $0 V_b$ ). The highest visible transmittance of 84.1 % was also observed for the films deposited at the  $-350 V_b$  condition. The X-ray diffraction observation indicated the IWO films deposited without substrate bias voltage were amorphous phase without any diffraction peaks, while the films deposited with bias voltage were polycrystalline with a low  $\text{In}_2\text{O}_3$  (222) diffraction peak and relatively high intensity (431) and (046) diffraction peaks. From the observed visible transmittance and electrical properties, it is concluded that the opto-electrical performance of the polycrystalline IWO film deposited by RF magnetron sputtering can be enhanced with effective substrate bias voltage conditions.

**Key words** W-doped  $\text{In}_2\text{O}_3$ , magnetron sputtering, X-ray reflectometer, figure of merit, visible transmittance.

## 1. 서 론

$\text{In}_2\text{O}_3$ <sup>1)</sup> 투명 금속 산화물을 비롯한  $\text{SnO}_2$ <sup>2)</sup>와  $\text{ZnO}$ <sup>3)</sup> 같은 n형 반도체 재료의 우수한 전기전도성과 높은 가시광 투광성은 많은 선행연구를 통하여 보고되었다. 특히 전기전도성을 극대화하기 위한 소량의 Sn을  $\text{In}_2\text{O}_3$ 에 첨가한 ITO 박막<sup>4)</sup>은 대표적인 투명 전도성 산화물(transparent conducting oxide, TCO) 소재로서 일반적으로 200 °C 이상의 열처리(기판온도)를 통하여  $\sim 10^{-4} \Omega\text{cm}$  영역의 전기 비저항과 80 % 이상의 가시광 투과성을 갖는다.<sup>5)</sup> 선행 보고된 ITO 박막의 전기광학적 특성보다 개선된 특성을 확보하기 위

하여 대면적 평판 표시소자(large flat displays devices)와 태양전지용 TCO 박막증착에 사용되는 마그네트론 스퍼터링<sup>4)</sup>과 저온 고진공 전자빔 증발법<sup>6)</sup>을 이용한 물리적 기상 증착법은 생산공정에서 열처리 온도 외에도 다양한 증착 후 표면처리법이 제시되고 있다.<sup>3,7)</sup> 이러한 TCO 특성 제고를 위한 연구의 일환으로 Kanai<sup>8)</sup>는 기존의  $\text{In}_2\text{O}_3$  박막에 소량의 하프늄(Hf), 지르코늄(Zr)과 텅스텐(W)을 첨가하고 전기 비저항의 변화를 분석하여, 하프늄과 지르코늄이 전기전도성 제고에 기여한 것에 비하여 텅스텐은 첨가 효과가 미약함을 보고하였다. 또한 Abe et al.<sup>9)</sup>은 실온 조건에서 직류(DC) 마그네트론 스퍼터링으로 증착한 텅스텐

<sup>†</sup>Corresponding author

E-Mail : [dkim84@ulsan.ac.kr](mailto:dkim84@ulsan.ac.kr) (D. Kim, Univ. Ulsan)

© Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

(W)이 포함된 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (indium tungsten oxide, IWO) 박막이 비정질(amorphous) 구조임을 보고하였고, Pan et al.<sup>10)</sup>은 IWO 박막을 라디오 주파수(RF) 반응성 마그네트론 스퍼터링으로 증착하고 박막의 전기비저항은  $3.2 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ , 평균 가시광 투과도는 80 %였음을 보고하였다. 본 연구에서는 실온조건에서 radio frequency (RF) 마그네트론 스퍼터를 이용하여 기판에 음 전압(negative bias voltage,  $-V_b$ )을 인가하며 증착된 다결정 IWO 박막의 전기적, 광학적 특성을 고찰하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에서 두께 100 nm의 IWO 박막 증착에 사용한 RF마그네트론 스퍼터링 조건과 기판에 인가된 전압( $-V_b$ ) 조건은 Table 1에 나타내었다. 직경 3인치 IWO 타겟(두께; 5 mm, 순도; 99.99 %, 95 wt% In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - 5.0 wt% W)과 유리(Corning 7059) 기판의 거리는 5 cm를 유지하였다. 증착에 앞서 기판은 이소프로판올(isopropanol)과 탈이온수(de-ionized water)로 초음파 세척하고 실온의 질소분위기에서 건조하였다. 증착 챔버의 초기 진공도  $5 \times 10^{-7}$  Torr에서 아르곤 가스를 5 sccm 유입하여  $1 \times 10^{-3}$  Torr 조건을 유지하며 타겟 표면의 오염층을 제거하기 위하여 pre-sputtering 을 5분간 실시하였다. 박막은 실온에서 증착하였으나 기판 인가전압에 따른 Ar<sup>+</sup> 이온충돌로 인하여 열전대(thermocouple, K-type)로 측정된 기판 온도는 최대 62 °C ( $-450 V_b$ ) 까지 증가하였다. 박막의 화학적 성분은 에너지 분산 X선 분광분석기(energy dispersive spectrometer, EDS)로 분석하고, 증착율과 두께는 표면단차측정기(surface profiler)로 측정하고 표면 root mean square (RMS) 거칠기는 원자간력현미경(atomic force microscope, AFM)으로 측정하였다. 기판전압에 따른 박막의 면저항(sheet resistance,  $R_{sh}$ ), 전하밀도(carrier density)와 이동도(mobility)를 포함한 전기적 특성은 홀-효과(hall-effect) 측정기로 측정하고 가시

**Table 1.** Experimental conditions of IWO deposition process.

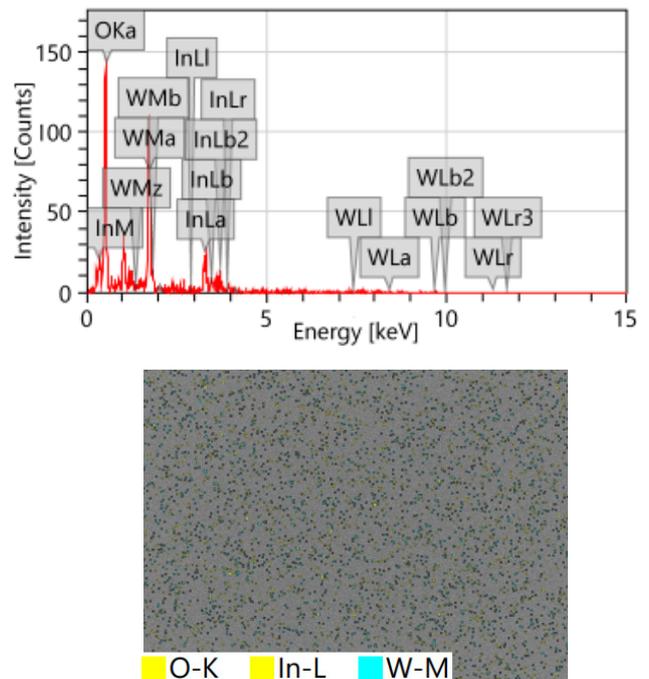
Base pressure (Torr)	$5.0 \times 10^{-7}$
Deposition pressure (Torr)	$1.0 \times 10^{-3}$
RF power density (W/cm <sup>2</sup> )	2.5
Ar gas flow rate (sccm)	5.0
Target composition	95 wt% In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - 5 wt% W
Substrate temperature (°C)	62
T-S substrate distance (cm)	5
Deposition rate (nm/Min)	10
Substrate bias voltage ( $-V_b$ )	150, 250, 350, 450

광 투과도는 UV-Vis. Spectro-photometer로 측정하였다. 박막의 결정성(crystallization)과 Ar<sup>+</sup> 이온충돌에 따른 박막의 밀도변화는 X-ray diffraction (XRD, Cu-K $\alpha$  radiation, 파장 1.5406 Å)과 X-ray reflectometer (XRR) 분석으로 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 기판전압 인가 없이 증착된 IWO 박막의 EDS 성분분석 결과이고 Table 2는 기판 인가전압 조건에 따른 박막의 증착율 변화이다. 기판전압이 최대  $-450 V_b$ 까지 인가됨에 따라서 Ar<sup>+</sup> 이온충돌에 의해 박막의 밀도증가와 더불어 표면입자의 탈락(re-sputtering)이 발생하기 때문에 증착율은 12.1에서 10.6 nm/Min.으로 인가전압에 반비례하며 감소하였다.

Fig. 2에 기판전압 조건에 따른 박막의 X-ray 회절패턴을 나타내었다. 기판 전압 인가 없이 증착된 박막에서 Abe et al.<sup>9)</sup>의 DC 마그네트론 스퍼터링으로 증착된 IWO 박막



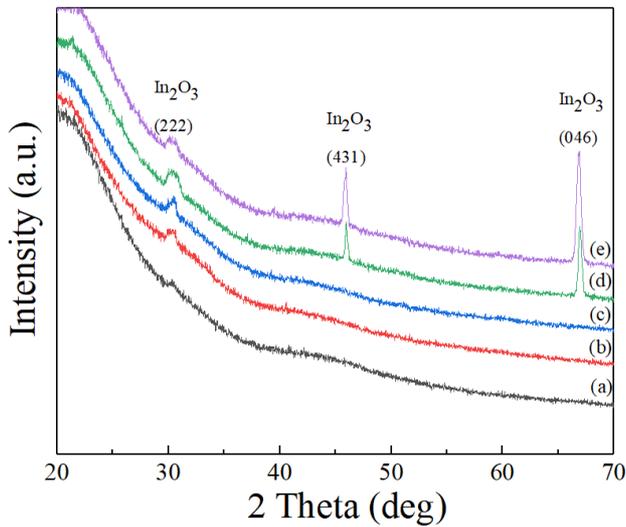
**Fig. 1.** Energy dispersive x-ray spectroscopy (EDS) analysis of IWO thin film.

**Table 2.** Effect of substrate bias voltage ( $-V_b$ ) on the deposition rate of IWO films.

Bias voltage	0	150	250	350	450
Deposition rate (nm/min)	12.1	11.4	11.1	10.8	10.6

의 결정구조와 유사하게 비정질 결정구조에 가까운 미약한 회절피크가 검출되었으나, 기판전압이 인가된 박막에서는 Bixbyite  $\text{In}_2\text{O}_3$  (222), (431), (046) 결정 면의 회절피크가 검출되었다. XRD 회절분석 결과로서 기판전압으로 가속된  $\text{Ar}^+$  이온의 충돌로 박막의 결정구조가 다결정질 박막으로 성장하였음을 알 수 있었다.

Fig. 3에 인가전압 조건에 따른 박막의 표면형상과 RMS 거칠기를 나타내었다. 투명전극용 박막의 전기전도도는 전하밀도와 전하이동도로 결정되므로 RMS 거칠기는 IWO 박막의 전기광학적 효율성에 중요한 요소가 된다. 기판전



**Fig. 2.** XRD patterns of IWO thin films deposited at different substrate bias voltages. (a) 0  $V_b$ , (b) -150  $V_b$ , (c) -250  $V_b$ , (d) -350  $V_b$ , (e) -450  $V_b$ .

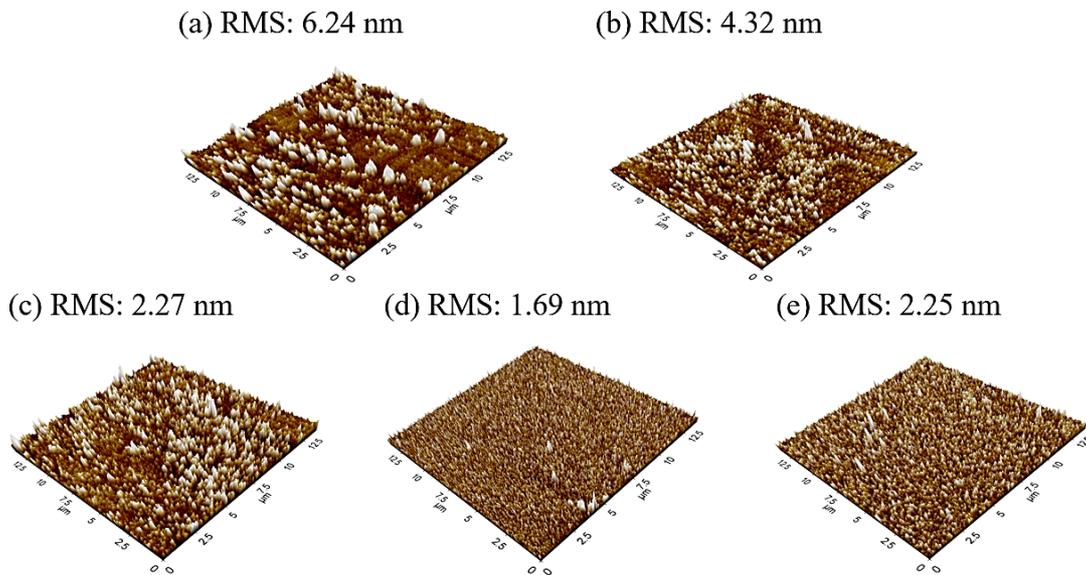
압 인가 없이 증착된 박막의 거칠기는 6.2 nm로 상대적으로 거친 표면을 보였고, 기판 전압이 증가함에 따라서 최저 1.7 nm (-350  $V_b$ )까지 감소하다가 높은 -450  $V_b$  조건에서 에너지가 더욱 강해진  $\text{Ar}^+$  이온의 충돌에 의하여 표면 re-sputtering이 발생하여 2.2 nm로 다소 증가함을 알 수 있었다.

Lee et al.<sup>11)</sup>은 기판의 변화와 무관하게 기판 인가전압에 따른 이온충돌의 결과로 ITO 박막의 전기광학적 특성 개선 효과를 발표하였고, Honda et al.<sup>12)</sup>은 bias sputtering 조건에서 증착된 ITO 박막의 산소농도의 깊이방향 분포(depth profile)를 분석하여  $\text{Ar}^+$  이온의 충돌에 의하여 산소원자가 표면에서 re-sputtering되고 전기비저항과 가시광 투과도에 영향을 미치는 산소농도가 결정되는 것을 고찰하였다.

Table 3에 기판 인가전압에 따른 IWO 박막의 전하밀도, 이동도, 밴드 갭, 전기비저항의 변화를 나타내었다. 본 연구에서도 기판전압의 증가에 비례하며 전하밀도가 최대

**Table 3.** Compared carrier density, mobility, band gap and resistivity of IWO films deposited at different substrate bias voltages.

Bias voltage ( $-V_b$ )	Carrier density ( $\times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ )	Mobility ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )	Band gap (eV)	Resistivity ( $\times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ )
0	1.35	6.2	3.933	75.20
150	6.33	10.7	3.941	9.29
250	8.72	12.1	3.947	5.95
350	9.55	31.8	3.957	2.06
450	26.30	5.9	3.968	4.02

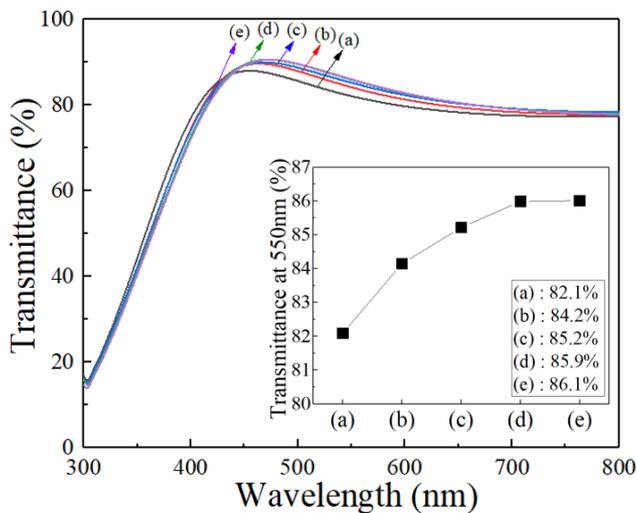


**Fig. 3.** Surface images and RMS roughness of the IWO films deposited at different substrate bias voltages. (a) 0  $V_b$ : 6.2 nm, (b) -150  $V_b$ : 4.3 nm, (c) -250  $V_b$ : 2.3 nm, (d) -350  $V_b$ : 1.7 nm, (e) -450  $V_b$ : 2.2 nm.

$2.63 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 까지 증가된 것은  $\text{Ar}^+$  이온의 충돌에 의한 박막의 산소결핍에 의한 전하밀도 증가효과로 판단된다. Table 3에서 기판전압 조건에 따른 전기비저항은  $7.52 \times 10^{-3} \Omega\text{cm}$ 에서  $2.06 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$  (-350 V<sub>b</sub>)까지 감소하다가 -450 V<sub>b</sub> 조건에서  $4.02 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ 로 증가하였다. 전기비저항의 초기 감소원인은 전하밀도와 이동도의 증가에 의한 것이며, -450 V<sub>b</sub> 조건에서 비저항의 증가는 높은 전하밀도( $2.63 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ )에 의한 산란(scattering)과 표면거칠기 증가[Fig. 3(e)]에 따른 이동도의 감소에 의한 것으로 사료된다.

Fig. 4는 기판전압 조건에 따른 IWO 박막의 가시광 투과도 변화이다. 박막의 표면거칠기와 전하밀도에 영향을 받는 가시광 투과도는 기판전압( $\leq 350 \text{ V}_b$ )에 비례하며 84.1%까지 증가하다가 -450 V<sub>b</sub>에서 가시광 투과도(84.0%)의 증가율이 포화되는 경향이 나타났다. 인가전압에 따른 가시광 투과도의 변화를 가시적으로 나타내기 위하여 550 nm 파장에서 비교된 박막의 투과도를 inset figure로 추가하였다.

기판전압과 가시광 투과도 그리고 박막밀도의 관계를 규명하기 위한 XRR분석 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 박막의 밀도는 초기  $6.13 \text{ g/cm}^3$  (0 V<sub>b</sub>)에서 인가전압에 비례하며  $6.45 \text{ g/cm}^3$  (-350 V<sub>b</sub>)까지 증가하다가  $6.37 \text{ g/cm}^3$  (-450 V<sub>b</sub>)로 감소하였다. XRR분석과 AFM 표면이미지를 비교한 결과로서, 높은 인가전압(-450 V<sub>b</sub>) 조건에서 가시광 투과도의 포화 상황은 표면 re-sputtering에 의한 박막의 밀도 감소와 표면거칠기의 증가에 의한 것으로 판단된다.

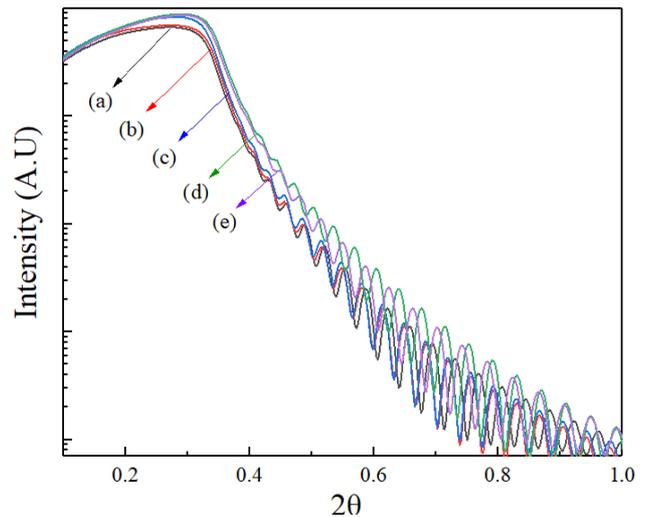


**Fig. 4.** The visible transmittance of the IWO films deposited at different substrate bias voltages and compared visible transmittance at 550 nm in wavelength is included in the figure. (a) 0 V<sub>b</sub>, (b) -150 V<sub>b</sub>, (c) -250 V<sub>b</sub>, (d) -350 V<sub>b</sub>, (e) -450 V<sub>b</sub>.

Table 4는 기판전압에 따른 면저항, 가시광 투과도, 그리고 figure of merit<sup>(13)</sup> (FOM,  $T^{10}/R_{sh}$ )의 변화이고 FOM은 다양한 기판 전압조건에서 측정된 박막의 가시광 평균 투과도( $T^{10}$ )와 면저항을 이용하여 전기광학적 효율 가치를 비교하는 기준이 된다. 본 연구에서는 -350 V<sub>b</sub> 조건에서 증착된 박막의 가장 낮은 면저항( $20.5 \Omega/\square$ )과 높은 가시광 투과도(84.1%)로 인하여 상대적으로 우수한  $8.6 \times 10^{-3} \Omega^{-1}$ 의 FOM이 측정되어 박막의 전기광학적 특성 최적화에 적합한 기판전압은 -350 V<sub>b</sub>인 것을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

RF 마그네트론 스퍼터를 이용하여 실온조건에서 유리 기판에 다결정질 IWO 박막을 증착하고 기판 인가전압 (V<sub>b</sub>)에 따른 전기적, 광학적 특성 변화를 고찰하였다. XRD 분석을 통하여 기판에 전압인가 없이 증착된 IWO 박막은



**Fig. 5.** The XRR spectra of the IWO films deposited at different substrate bias voltages. (a) 0 V<sub>b</sub>:  $6.13 \text{ g/cm}^3$ , (b) -150 V<sub>b</sub>:  $6.17 \text{ g/cm}^3$ , (c) -250 V<sub>b</sub>:  $6.28 \text{ g/cm}^3$ , (d) -350 V<sub>b</sub>:  $6.45 \text{ g/cm}^3$ , (e) -450 V<sub>b</sub>:  $6.37 \text{ g/cm}^3$ .

**Table 4.** Compared density, sheet resistance ( $R_{sh}$ ), visible transmittance (T) and figure of merit (FOM) of IWO films deposited at different substrate bias voltages.

Bias voltage (-V <sub>b</sub> )	Density (g/cm <sup>3</sup> )	R <sub>sh</sub> (Ω/□)	Transmittance (%)	FOM (Ω <sup>-1</sup> )
0	6.13	751.0	81.8	$1.8 \times 10^{-4}$
150	6.17	92.8	83.1	$1.7 \times 10^{-3}$
250	6.28	59.4	83.8	$2.9 \times 10^{-3}$
350	6.45	20.5	84.1	$8.6 \times 10^{-3}$
450	6.37	40.1	84.0	$4.4 \times 10^{-3}$

비정질 구조였으나, 기관전압이 인가된 조건에서는 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (222), (431), (046) 회절패턴이 측정되어 다결정질 박막임을 알 수 있었다. 박막의 전기전도도와 가시광 투과도 모두 기관 인가전압의 영향을 받아서 -350 V<sub>b</sub> 조건에서 84.1% 가시광 투과도와  $2.06 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$ 의 비저항이 측정되어 플라즈마 내 양이온의 기관 충돌로 박막의 밀도가 증가하고 전기적 광학적 특성이 개선됨을 알 수 있었다.

## Acknowledgement

This work was supported by the 2023 Research Fund of University of Ulsan.

## References

1. S. H. Choe, J. K. Jang, H. J. Kim, J. W. Choi, S. B. Heo, Y. S. Kim, Y. M. Kong and D. Kim, *Korean J. Met. Mater.*, **59**, 545 (2021).
2. P. Agoston, K. Albe, R. M. Nieminen and M. J. Puska, *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 245501 (2009).
3. J. K. Jang, Y. Park, Y. Lee, J. W. Choi, H. J. Kim, S. B. Heo, Y. M. Kong and D. Kim, *Korean J. Met. Mater.*, **60**, 668 (2022).
4. M. Fikry, M. Mohie, M. Gamal, A. Ibrahim and G. Genidy, *Opt. Quantum Electron.*, **53**, 122 (2021).
5. S. Heo, S. Y. Kim, S. H. Kim, S. K. Kim, Y. S. Kim and D. Kim, *J. Korean Soc. Heat Treat.*, **26**, 55 (2013).
6. J. Rhew and H. J. Kang, *Polymer*, **36**, 393 (2012).
7. S. K. Sharma, K. Biswas and J. D. Majumdar, *Met. Mater. Int.*, **27**, 5360 (2021).
8. Y. Kanai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **23**, 127 (1984).
9. Y. Abe, N. Ishiyama, H. Kuno and K. Adachi, *J. Mater. Sci.*, **40**, 1611 (2005).
10. J. Pan, W. Wang, D. Wu, Q. Fu and D. Ma, *J. Mater. Sci. Technol.*, **30**, 644 (2014).
11. J. Lee, H. Jung, D. Lim, K. Yang, W. Song and J. Yi, *Thin Solid Films*, **480-481**, 157 (2005).
12. S. Honda, K. Chihara, M. Watamori and K. Oura, *Appl. Surf. Sci.*, **113-114**, 408 (1997).
13. J. H. Park, J. H. Chae and D. Kim, *J. Alloys Compd.*, **478**, 330 (2009).

## <저자소개>

### 최재욱

울산대학교 첨단소재공학부 석사과정  
한국생산기술연구원 동남본부 연구원

### 이연학

울산대학교 첨단소재공학부 석사과정

### 박민성

울산대학교 첨단소재공학부 학부과정

### 공영민

울산대학교 첨단소재공학부 교수

### 김대일

울산대학교 첨단소재공학부 교수