

신경회로망을 이용한 ITO 박막 성장 공정의 모형화

Modeling of Indium Tin Oxide(ITO) Film Deposition Process using Neural Network

민철홍¹, 박성진², 윤능구², 김태선^{1,a}

(Chul Hong Min¹, Sung-Jin Park², Neung-goo Yoon², and Tae Seon Kim^{1,a})

Abstract

Compare to conventional Indium Tin Oxide (ITO) film deposition methods, cesium assisted sputtering method has been shown superior electrical, mechanical, and optical film properties. However, it is not easy to use cesium assisted sputtering method since ITO film properties are very sensitive to Cesium assisted equipment condition but their mechanism is not yet clearly defined physically or mathematically. Therefore, to optimize deposited ITO film characteristics, development of accurate and reliable process model is essential. For this, in this work, we developed ITO film deposition process model using neural networks and design of experiment (DOE). Developed model prediction results are compared with conventional statistical regression model and developed neural process model has been shown superior prediction results on modeling of ITO film thickness, sheet resistance, and transmittance characteristics.

Key Words : Indium tin oxide(ITO), Neural network, Process modeling, Statistical regression analysis, Cesium assisted sputtering

1. 서론

최근 광 투과율을 갖으며 동시에 전기 전도성을 띄는 투명 전도막(transparent conducting film)에 대한 요구가 높아지고 있다. 이러한 추세는 태양전지(solar cell) 및 디스플레이(display)산업에서부터 현재는 전자·전기·재료·기계 등 다양한 분야에서 필수적인 요소가 되었다. 투명하면서도 전기전도성을 갖는 박막의 개발은 1907년 bafeker에 의해 발견된 이래로 많은 연구가 진행 되어왔는데[1-8], 그 중 ITO(Indium Tin Oxide) 박막은 가시광선영역에서는 투명하고 적외선 영역은 반사하는 광학적 특성이 있어서 에너지 보존용 백열전구, 건물

창 등의 코팅으로 활용되었다. 특히, ITO 박막은 빛을 투과할 수 있는 광 투과성과 전기가 흐르는 전기전도성의 특성이 좋아 디스플레이, 태양전지의 전극뿐만 아니라 센서, 카메라, 터치패드, 투명열선, 안테나 등의 다양한 분야에 응용이 가능하여 많은 연구가 진행되고 있다[2,3]. 그러나 ITO 박막의 특성을 높이기 위해서는 고온 열처리과정을 필수적으로 요구하며, 그 온도가 높을수록 박막의 투과성과 전도성이 향상되는 것으로 보고되어지고 있다. 일반적으로 ITO박막은 300℃ 이상의 고온 열처리 공정을 거쳐야지만 효과적인 광학적 특성과 전기적 특성을 얻을 수 있다[4-6]. 이러한 높은 온도의 공정조건은 공정상의 제한이 많기 때문에 최근 다양한 방법을 이용하여 낮은 온도에서 ITO 박막을 증착하는 연구들이 진행되고 있다[7,8]. 그 중에서도 세슘보조 스퍼터링(cesium assisted sputtering)방법은 증착 기관의 표면에서 음이온을 발생시키는 세슘을 기존의 스퍼터링 장비에 첨가하여 기관과 세슘용기의 온도, 유량 등의 공정변수

1. 가톨릭대학교 정보통신전자공학
(부천시 원미구 역곡2동 산43-1)
2. (주)소로나

a. Corresponding Author : tkim@catholic.ac.kr
접수일자 : 2009. 6. 16
심사완료 : 2009. 8. 12

들을 조절하여 저온에서도 우수한 성질을 갖는 ITO 박막을 증착할 수 있다. 그러나 세습보조 스퍼터링 방법을 이용하여 증착한 ITO 박막은 스퍼터장비의 공정조건뿐 아니라 세습이온 공급장치의 공정변수에 따라 박막의 특성이 매우 다양하게 나타나지만 현재 이에 대한 물리적 모형이 정확히 정의되어있지 못한 상황이다. 따라서, 세습보조 스퍼터링 장비의 특성을 최적화하기 위해서는 우선적으로 박막특성분석을 위한 공정모형화 과정이 필수적으로 요구된다.

본 논문에서는 플라즈마를 이용하여 저온에서도 우수한 성질의 박막을 증착할 수 있는 플라즈마 세습 보조 스퍼터링 장비를 개발하고 개발된 세습 보조 스퍼터링 장치의 박막 특성을 분석, 최적화하기 위한 모형의 개발을 목적으로 한다. 이를 위해 다섯가지 공정조건을 모형의 공정입력변수로 설정하고 선정된 공정변수를 바탕으로 2수준의 실험계획법(2-level design of experiment)을 통해 모형화를 위한 실험데이터를 획득하였다. 제한된 데이터를 이용하여 효율적으로 비선형적 공정특성을 모형화하기 위하여 본 논문에서는 신경회로망을 이용하여 박막의 증착두께, 면저항 및 투과도의 예측모형을 개발했다. 또한 통계적 분석방법과 회귀분석을 통하여 입력 변수들의 주요 인자를 찾고 그 결과를 신경회로망을 이용한 예측모형결과와 비교분석하였다.

2. 실험 방법

2.1 변수설정 및 실험방법

본 실험에서는 실리콘 웨이퍼와 유리 기판 위에 ITO 박막을 증착하여 박막의 특성을 분석하였다. 예비실험을 통하여 박막의 특성에 영향이 큰 다섯가지 공정변수, 즉 플라즈마 DC 파워(DC power), 챔버 압력(pressure), 전송가스유량(carrier flow), 세습 저장용기의 온도(Cs temp.) 및 측정기판의 온도(sub. temp.)를 선정하였다. 그 중 기판의 온도는 낮은 온도에서 박막을 증착하기 위해서 가급적 낮은 온도범위 내에서 설정 하였다. 표 1은 세습보조 스퍼터링의 특성모형화를 위해 선택된 공정변수와 범위이며, 표 2는 박막의 특성분석을 위해 고려된 박막특성들이다.

표 1에서 정의된 공정변수와 범위를 기준으로 2수준의 실험계획법을 설계하여 실험을 진행하였다. 여기서 공정변수의 범위는 스퍼터링 장비의 설계값을 기반으로 정의하였다. 박막의 특성분석을 위

표 1. 실험계획법에 사용된 공정변수와 범위.

Table 1. Input factors and their ranges for DOE.

Parameter	Range	Unit
DC power	50, 100	W
Pressure	2, 10	mTorr
Carrier flow	3, 10	sccm
Cs Temp.	80, 150	℃
Sub. Temp.	27, 100	℃

표 2. ITO 박막 특성분석을 위한 공정응답 변수.

Table 2. Considered responses for ITO film characterization.

Parameter	Unit
Thickness	Å
Sheet resistance	Ω/cm
Transmittance	%

하여 실제 기판온도와 설정온도 사이의 온도 차이는 thermo-couple wafer를 이용하여 측정하였으며, 증착두께는 surface profiler를 이용하여 측정하였다. 또 박막 증착 후 면저항 측정은 4-point probe를 이용하였고, 이 값에 두께를 고려하여 비저항 값을 산출하였으며, 박막의 투과율은 UV-Vis spectrophotometer를 이용하여 측정하였다.

2.2 신경회로망 예측모형

박막의 특성예측을 위한 신경회로망 모형으로는 오류역전파 신경회로망 (feed-forward error back-propagation neural network)을 사용하였으며, 전체 실험 데이터 중 75%를 학습(training) 데이터로 사용하였고, 나머지 25%의 데이터를 평가(test) 데이터로 사용하였다. 이때 예측모형의 신뢰성 확보를 위해 임의로(random) 선택된 학습 및 평가 데이터는 반복교차검증(repeated cross validation)과정을 거쳤다. 신경회로망 모형의 타겟(target)값은 0과 1사이의 값으로 정규화 전처리 과정을 거쳤으며, 네트워크 구조의 최적화 과정을 통해 입력 뉴런 5개, 은닉층 뉴런 3개 그리고 출력 뉴런 1개의 구조를 갖는 신경회로망 네트워크를 선택하였다. 신경회로망의 입력변수는 표 1과 같이 5개의 변수(플라즈마 DC 파워, 챔버 압력, 전송가스유량, 세습 저장용기의 온도 및 기판의 온도)이며, 입력변

수에 대한 신경회로망의 출력 값은 표 2와 같이 증착두께, 먼지항, 투과율로서 각각 모형화하였다. 예측모형에 사용된 신경회로망의 전달 함수는 Hyperbolic Tangent function을 사용하였으며, 신경회로망 예측모형과 다중회귀분석 예측모형의 성능 평가는 RMSE(root mean squared error)를 이용하였다. 이때 RMSE의 계산식 σ 은 식(1)과 같다.

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2} \quad (1)$$

여기서, y_i 는 실험을 통한 출력 값이고, \hat{y}_i 는 모형의 예측 값이다.

3. 실험결과 및 분석

3.1 박막의 증착두께 예측모형

상기 기술한 바와 같이 실험데이터의 일부를 학습 데이터로 나머지 데이터를 테스트 데이터로 활용하여 박막 증착두께를 위한 신경회로망 예측모형을 구현하였다. 신경회로망의 학습 RMSE값은 학습 과적합(training overfitting)을 방지하기 위하여 약 5% 수준으로 고정하고 예측 값에 대한 테스트를 진행한 결과 4.6% 수준의 테스트 RMSE 값을 보였다. 그림 1은 플라즈마 DC 파워와 챔버 압력의 변동에 따른 증착두께의 특성을 나타낸다. 이때 나머지 공정변수들의 영향을 제외하기 위하여, 전송가스유량(3sccm), 세습 저장용기의 온도(80℃) 및 측정기판의 온도(27℃)는 낮은 수준으로 고정시킨 후 신경회로망을 통해 실험한 예측 값의 표면도를 그린 그림이다. 예측 결과를 보면 증착두께에 가장 큰 영향을 주는 인자는 플라즈마 DC 파워로서 플라즈마 DC 파워가 50(W)에서 챔버 압력이 증가 할수록 증착두께가 선형적으로 증가됨을 볼 수 있다. 또한 나머지 공정조건이 낮은 값으로 고정된 상태에서는 챔버의 압력증가에 따라 증착두께가 커짐을 알 수 있다. 그림 2는 신경회로망 모형의 예측 값을 등고선으로 표현한 그림으로 진청색으로 갈수록 증착두께가 얇은 것이며, 녹색으로 갈수록 증착두께가 두꺼운 것이다. 등고선의 두께가 균일하지 못함을 볼 때, 플라즈마 DC 파워와 챔버 압력의 증착두께에 대한 영향은 그 변동에 비선형적이 특성이 있음을 알 수 있지만 대체로 선형에 가깝게 보여진다.

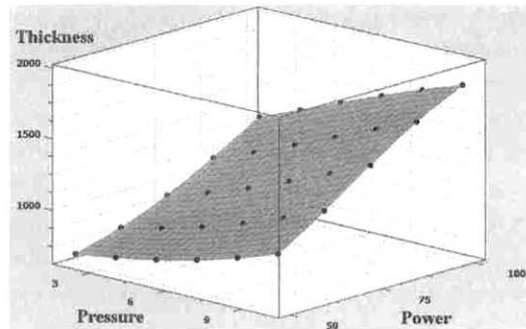


그림 1. DC파워와 챔버 압력에 따른 증착두께의 영향.

Fig. 1. Effects of plasma DC power and chamber pressure on deposited ITO film thickness.

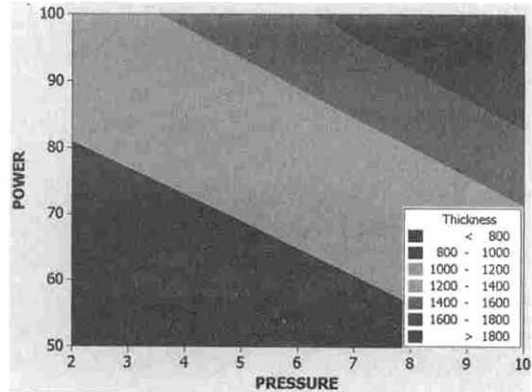


그림 2. DC파워와 챔버 압력에 따른 증착두께의 영향 등고선.

Fig. 2. Contour plot for effects of plasma DC power and chamber pressure on deposited ITO film thickness.

입력데이터를 통하여 박막의 증착두께에 영향을 주는 변수인자들을 추정하기 위하여 회귀분석을 시행하였다. 회귀분석에 사용된 실험데이터는 신경회로망 모형에서 사용한 동일한 데이터를 사용하였으며, 회귀분석의 평가데이터 역시 동일한 방법으로 RMSE 값을 계산하였다. 표 3은 회귀분석 결과에 따른 각 인자의 계수 값과 T-검정값 그리고 P값을 정리한 것이다. 여기서 “Coef”는 회귀 분석식의 계수 값이며, “T”는 T-검정값, “P”는 그것의 p값(p-value)이다. T값이 높고 P값이 작을 때 그

변수는 증착두께를 설명하는데 주요하다는 뜻이며, 분석결과 플라즈마 DC 파워와 챔버 압력, 기판의 온도의 순서로 증착두께의 영향을 주는 주요한 인자로 분석되었다. 증착두께에 대한 회귀분석 결과는 R-제곱 값으로 표현할 수 있는데, 증착두께에 대한 회귀분석의 R-제곱 값은 78.3%로 회귀방정식에 의해 설명되는 인자들의 변동이 78.3%로 높다는 것을 알 수 있다. 식 (2)은 회귀분석에 대한 결과 식이다. 여기서, P_1 은 플라즈마 DC 파워, P_2 는 챔버 압력, C_1 은 전송가스유량, C_2 는 세습 저장용기의 온도, 그리고 S 는 기판의 온도이다. 표 4는 신경회로망 예측모형과 회귀분석을 이용한 예측모형의 테스트 RMSE 비교 결과이다.

$$THICKNESS = 78 + (10.6 \times P_1) + (36.4 \times P_2) + (20.6 \times C_1) - (0.30 \times C_2) + (2.29 \times S) \quad (2)$$

3.2 박막의 면저항 예측모형

박막의 면저항 예측 신경회로망 모형을 구현하기 위해 입력데이터와 평가데이터는 증착두께모형과 동일한 데이터를 사용하였으며, 신경회로망의 타깃값 역시 0과 1사이로 동일한 방법의 정규화과정을 거쳤다. 학습 RMSE 값은 약 5% 수준으로 설정하고, 학습을 시행한 후 테스트데이터를 이용하여 RMSE값을 확인한 결과 약 2.15%의 오차를

표 3. 증착두께에 대한 회귀분석 결과.

Table 3. Regression analysis results for deposition rate of ITO film.

Predictor	Coef.	T	P
Power	10.566	3.53	0.012
Pressure	36.37	1.86	0.112
Carrier flow	20.56	0.88	0.414
Cs temp.	-0.296	-0.14	0.895
Sub. temp.	2.285	1.07	0.327

표 4. 증착두께에 대한 신경회로망모형과 회귀분석의 예측오차(RMSE) 비교.

Table 4. RMS prediction error comparison for deposition rate.

	Test (Validation) RMSE
신경회로망 모형	4.6%
회귀분석 모형	13.8%

갖는 예측모형을 구현할 수 있었다. 그림 3은 면저항에 가장 큰 영향을 주는 챔버 압력과 기판의 온도를 변화시키고, 플라즈마 DC 파워(50 W)와 전송가스유량(3 sccm), 세습 저장용기의 온도(80°C)를 낮은 수준으로 고정시킨 후 신경회로망을 이용하여 면저항 특성을 예측한 표면도이다. 결과그림을 보면 챔버 압력이 높고 기판의 온도가 높을수록 면저항이 낮아지는 것을 볼 수 있으며, 특히 챔버의 압력이 낮은 범위에서 기판의 온도변화에 따라 면저항의 변화폭이 큰 것을 볼 수 있다. 이 예측 결과에 따르면 챔버 압력이 높고 기판의 온도가 높을수록 면저항이 낮은 ITO 박막을 얻을 수 있다. 표 5는 회귀분석 결과에 따라 각 인자의 계수값과 T-검정값, P 확률값을 정리한 표로서, 분석결과를 보면 기판의 온도, 챔버의 압력, 플라즈마 DC 파워의 순서로 박막 면저항에 영향을 주는 주요인자로 분석되었다.

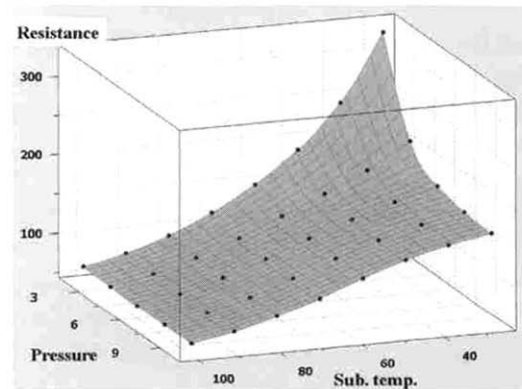


그림 3. 챔버 압력과 기판온도에 따른 박막 면저항의 영향.

Fig. 3. Effects of chamber pressure and substrate temperature on sheet resistance.

표 5. 박막 면저항에 대한 회귀분석 결과.

Table 5. Regression analysis results for sheet resistance of ITO film.

Predictor	Coef.	T	P
Power	1.216	0.64	0.547
Pressure	-23.26	-1.87	0.111
Carrier flow	-5.37	-0.36	0.731
Cs temp.	-0.051	-0.04	0.971
Sub. temp.	-2.914	-2.13	0.077

ITO 박막 면저항에 대한 회귀분석 결과의 R-제곱 값은 63.0%이며, 회귀분석 식은 식(3)과 같다. 여기서, P_1 은 플라즈마 DC 파워, P_2 는 챔버 압력, C_1 은 전송가스유량, C_2 는 세습 저장용기의 온도, 그리고 S 는 기판의 온도이다. 표 6은 박막 면저항에 대한 신경회로망 예측모형과 회귀분석을 이용한 예측모형의 테스트 RMSE 값을 비교한 결과이다.

$$\begin{aligned} \text{Sheet resistance} = & 435 + (1.22 \times P_1) - (23.3 \times P_2) \\ & - (5.4 \times C_1) - (0.05 \times C_2) - (2.91 \times S) \end{aligned} \quad (3)$$

3.3 박막의 투과율 예측모형

박막의 투과율에 대한 특성예측 신경회로망 모형 역시 앞서 사용한 것과 동일한 학습 및 평가 데이터를 이용하여 구현하였으며, 동일한 방법의 정규화 과정을 거쳐 신경회로망의 타깃 값을 정의하였다. 신경회로망의 학습 RMSE 값 역시 약 5% 수준으로 설정하고 신경회로망을 학습한 후 테스트 데이터를 이용하여 RMSE 값을 계산한 결과 13.7%의 오차를 보였다. 그림 4는 구현된 신경회로망 예측모형을 이용하여 투과율에 가장 큰 영향을 주는 2가지 인자(플라즈마 DC 파워, 세습 저장용기의 온도)를 추출하여 변수값을 변화시키고, 나머지 변수인 챔버 압력, 전송가스유량 및 기판의 온도는 각각 10 mTorr, 10 sccm, 100°C로 높은 값으로 고정하여 박막의 투과율에 대한 예측 값을 표면도로 그린 그림이다. 예측 결과를 보면 박막의 투과율은 플라즈마 DC 파워가 낮고 세습 저장용기의 온도가 높을수록 투과율이 높아지는 것을 확인할 수 있었다. 표 7은 투과율에 대한 회귀분석 결과로서 각 인자의 계수 값과 T-검정값, P 확률 값을 정리한 표이다. 분석결과를 보면 세습 저장용기의 온도, 플라즈마 DC 파워, 챔버 압력의 순서 박막의 투과율에 영향을 주는 주요인자로 분석되었으며, 세습 저장용기의 온도가 투과율에 가장 큰 영향을 주는 주요 변수임을 확인할 수 있다.

ITO 박막 투과율에 대한 회귀분석 결과의 R-제곱 값은 52.9%이며, 회귀분석 식은 식(4)과 같다. 여

기서, P_1 은 플라즈마 DC 파워, P_2 는 챔버 압력, C_1 은 전송가스유량, C_2 는 세습 저장용기의 온도, 그리고 S 는 기판의 온도이다. 표 8은 ITO 박막의 투과율에 대한 신경회로망 예측모형과 회귀분석을 이용한 예측모형의 테스트 RMSE 값을 비교한 결과이다.

$$\begin{aligned} \text{Transmittance} = & -0.9 + (0.3 \times P_1) + (1.91 \times P_2) \\ & + (0.37 \times C_1) + (0.67 \times C_2) + (0.014 \times S) \end{aligned} \quad (4)$$

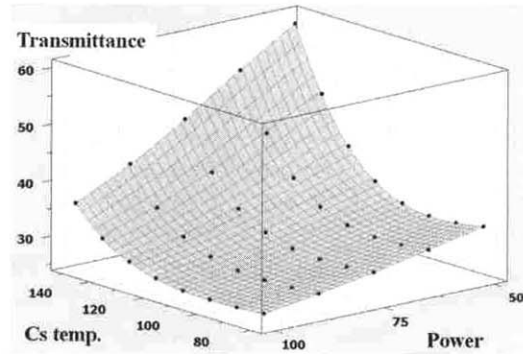


그림 4. 챔버 압력과 기판온도에 따른 박막 투과율의 표면도.

Fig. 4. Effects of chamber pressure and Cs temperature on transmittance

표 7. 박막 투과율에 대한 회귀분석 결과.

Table 7. Regression analysis results for transmittance of ITO film.

Predictor	Coef.	T	P
Power	0.3105	0.82	0.444
Pressure	1.910	0.77	0.470
Carrier flow	0.366	0.13	0.901
Cs temp.	0.6656	2.46	0.049
Sub. temp.	0.0136	0.05	0.963

표 8. 박막 투과율에 대한 신경회로망과 회귀분석의 RMSE 비교.

Table 8. RMSE comparison result of neural network model and regression mode for transmittance.

	Test (Validation) RMSE
신경회로망 모형	13.77%
회귀분석 모형	39.43%

표 6. 박막 면저항에 대한 신경회로망과 회귀분석의 RMSE 비교.

Table 6. RMSE comparison result of neural network model and regression mode for sheet resistance.

	Test (Validation) RMSE
신경회로망 모형	2.15%
회귀분석 모형	14.25%

4. 결 론

본 논문에서는 플라즈마를 이용하여 저온에서도 우수한 성질의 박막을 증착할 수 있는 플라즈마 세습 보조 스퍼터링 장비의 박막특성을 분석하기 위해 신경회로망과 회귀분석을 이용하여 특성 예측모형을 구현하고 그 결과를 비교분석하였다. 박막의 특성을 분석하기 위하여 5가지 입력변수인 플라즈마 DC 파워, 챔버 압력, 전송가스유량, 세습 저장용기의 온도, 증착기판의 온도를 설정하고, 2 수준의 실험 계획법을 설계 한 후 실험을 통하여 박막의 특성을 분석하였다. 그 데이터를 기반으로 신경회로망 알고리즘과 회귀분석을 이용하여 세습 보조 스퍼터링 장치의 박막 특성 예측모형을 구현한 결과 증착두께에 대한 신경회로망 예측모형의 테스트 RMSE는 4.6%, 회귀분석을 이용한 예측모형의 RMSE는 13.8%의 오차를 보였으며, 박막 면저항에 대한 신경회로망과 회귀분석의 테스트 RMSE는 각각 2.15%, 14.25%, 박막 투과율에 대한 신경회로망과 회귀분석의 테스트 RMSE는 각각 13.77%와 39.43%의 결과를 얻었다. 각각의 예측모형에서 회귀분석의 경우 일부구간에서 신경회로망보다 좋은 예측결과를 보였으나 그 외의 구간에서는 오차가 커지는 것을 볼 수 있었다. 이러한 결과로 볼때 신경회로망을 이용한 예측모형이 비선형적인 입출력 반응 예측모형에 우수한 성능을 보이기 때문에 비선형적인 예측결과를 보인 본 실험에서 회귀분석보다 우수한 예측모형을 구현 할 수 있었다. 이러한 신경회로망을 이용한 예측모형은 소수의 실험결과를 이용하여 박막특성을 예측할 수 있어 박막의 특성분석 및 공정 최적화에 있어 시간과 비용을 절약할 수 있다는 장점과 기존의 통계적 방법보다 비선형적인 특성을 분석하는데 있어 뛰어난 성능을 보여 다양한 분야의 예측 모형으로서 응용이 가능하다.

감사의 글

본 연구는 2007년도 가톨릭대학교 교비연구비 지원으로 이루어졌음.

참고 문헌

- [1] H. Kuhn, "Present status and future prospect of LB film research", 89 Fourth International Conference on LB films, p. 2, 1989.
- [2] J. B. Chu, H. B. Zhu, X. B. Xu, Z. Sun, Y. W. Chen, and S. M. Huang, "RF magnetron sputtered indium tin oxide thin films for application in solar cells", Nanoelectronics Conference, p. 728, 2008.
- [3] F. Colombel, X. Castel, M. Himdi, G. Legeay, and E. M. Cruz, "Ultrathin metal layer, ITO film and ITO/Cu/ITO multilayer towards transparent antenna", Science, Measurement & Technology, IET, Vol. 3, Iss. 3, p. 229, 2009.
- [4] K. Suzuki, N. Hashimoto, T. Oyama, J. Shimizu, Y. Akao, and H. Kojima, "Large scale and low resistance ITO films formed at high deposition rates", Thin Solid Films., Vol. 226, No. 1, p. 104, 1993.
- [5] H. L. Ma, D. H. Zhang, P. Ma, S. Z. Win, and S. Y. Li, "Preparation and properties of transparent conducting indium tin oxide films deposited by reactive evaporation", Thin Solid Films., Vol. 263, No. 1, p. 105, 1995.
- [6] P. K. Song, Y. Shigesato, M. Kameil, and I. YasuI, "Electrical and structural properties of Tin-doped indium oxide films deposited by DC sputtering at room temperature", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5A, p. 2921, 1999.
- [7] A. H. M. Zahirul Alam, P. K. Saha, T. Hata, and K. Sasaki, "High-rate reactive deposition of indium oxide films on unheated substrate using ozonegas", Thin Solid Films, Vol. 352, No. 1-2, p. 133, 1999.
- [8] 이임영, 최상대, 이기암, "상온 이온 보조 증착된 ITO 박막의 특성", 한국광학회지, 13권, 3호, p. 204, 2002.