

기관 부근의 자기장이 RF 스퍼터링법으로 증착된 ITO 박막의 특성에 미치는 영향

김현수¹, 장호원², 강종윤², 김진상², 윤석진², 김창교^{1,a}

¹ 순천향대학교 전자정보공학과

² 한국과학기술연구원 전자재료센터

Influence of Magnetic Field Near the Substrate on Characteristics of ITO Film Deposited by RF Sputtering Method

Hyun-Soo Kim¹, Ho Won Jang², Jong Yoon Kang², Jin Sang Kim², Suk Jin Yoon², and Chang Kyo Kim^{1,a}

¹ Department of Electronics and Information Engineering, Soonchunhyang University, Asan 336-745, Korea

² Korea Institute of Science and Technology, Electronic Materials Center, Seoul 136-791, Korea

(Received June 15, 2012; Revised June 21, 2012; Accepted June 24, 2012)

Abstract: Indium tin oxide (ITO) films were prepared using radio frequency (RF) magnetron sputtering method. magnets were equipped near the target in the sputter to bring the plasma near the target. The effect of magnetic field that brings the plasma near the substrate was compared with that of substrate heating. The effect of substrate heating on the grain size of the ITO thin film was larger than that of the magnetic field. However, the grain size of the ITO thin film was larger when the magnetic field was applied near the substrate during the sputtering process than when the substrate was not heated and the magnetic field was not applied. If stronger magnetic field is applied near the substrate during sputtering, it can be expected that the ITO thin film with good electrical conductivity and high transparency is obtained at low substrate temperature. When magnetic field of 90 Gauss was applied near the substrate during sputtering, the mobility of the ITO thin film increased from $15.2 \text{ cm}^2/V.s$ to $23.3 \text{ cm}^2/V.s$, whereas the sheet resistivity decreased from $7.68 \Omega \cdot \text{cm}$ to $5.11 \Omega \cdot \text{cm}$.

Keywords: Sputter, Magnet, ITO, Flexible substrate

1. 서론

최근 광·전자 분야의 발전에 따라 높은 광 투과율과 전기전도도를 함께 가지는 투명 전도막에 관한 연구가 높아지고 있다. 이에 따라 높은 광투과율과 전

기전도도를 가지는 투명 전도막을 제조하기 위해 많은 연구가 진행되고 있다 [1-3]. 투명 전도막 물질로 ITO (indium tin oxide) 박막이 가장 많은 연구가 되고 있다 [4]. ITO 박막이 다른 투명 전도막 보다 많은 연구가 진행되고 실용화된 요인으로는 다음과 같

은 세 가지로 설명할 수 있다. 첫째로 ITO 박막은 높은 전기전도도를 갖고 있다. 높은 전기전도도는 디스플레이를 구동시키는데 요구되는 전압을 낮게 하여 디스플레이 설계의 유연성을 높이고, 에너지 절약 효과는 물론 장치의 열화를 방지하여 제품의 생명력을 길게 하는 장점이 있다. 두 번째로는 가시광선 투과도가 좋다는 것이다. 특히 가시광선 중 청색 파장의 박막 내 흡수율이 다른 투명 전도막 보다 낮아서 색의 구현 범위가 보다 넓은 장점을 갖고 있다. 마지막으로 ITO박막은 주변 환경에 대한 안정성이 뛰어난 특성을 갖고 있다 [5]. 스퍼터링 법을 이용하여 ITO 박막을 증착할 경우에 박막의 결정성을 향상시키기 위해 기판을 200°C 이상으로 유지하고 있다. 박막의 결정성이 높아지면 전기전도도 또한 높아지는 것으로 알려져 있다 [6,7]. 플렉서블 기판을 이용하는 전자소자에 대한 관심이 증가하고 있다 [8-11]. 플라스틱이나 종이와 같은 플렉서블 기판을 이용할 경우에는 200°C 이상의 온도에서 ITO 박막 증착 공정을 수행하기가 어렵다. 그러므로 저온에서 ITO 박막을 증착하는 공정을 개발하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 ITO 박막의 공정온도를 낮추기 위해서 자석을 기판 부근에 배치하여서 플라즈마를 기판 부근으로 인출하였다. 기판 부근으로 인출된 플라즈마가 증착 속도를 높이고 입자의 크기를 크게 형성하여서 박막의 이동도를 증가하도록 하였다. 기판 부근의 자기장 세기, 기판온도 및 증착시간 등을 변화시키면서 증착한 ITO 박막의 결정화 정도와 표면형상을 관찰하였다. 또한, ITO 박막의 전기전도도와 투과율을 조사하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용한 스퍼터 장치의 개략도를 그림 1에 나타내었다. 기판은 스퍼터링이 진행되는 동안 회전하도록 하였고 타겟 부근에 자석을 배치하여 플라즈마를 타겟 부근까지 인출하였다.

순도 99.99%의 ITO 타겟을 이용하여 박막을 증착하였다. 기판은 20×20 mm² 크기의 소다석회유리를 사용하였다.

공정압력은 3.0×10⁻⁶ Torr의 고진공에서 아르곤 가스와 산소가스를 주입하여 2.5×10⁻³ Torr의 진공을 유지하였다. RF (radio frequency) 전력을 100 W로 고정하고 타겟 표면의 산화층 및 불순물을 제거하기 위해

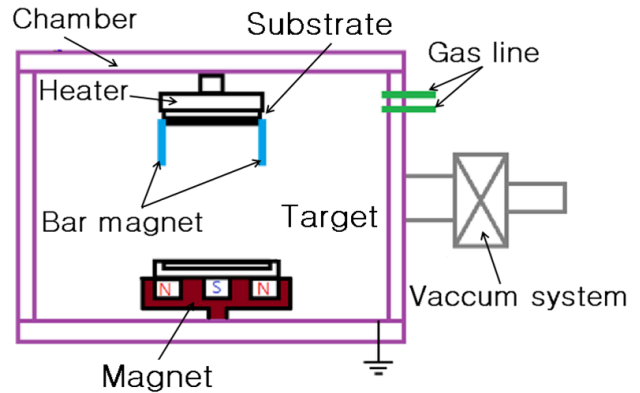


Fig. 1. A schematic of the conventional sputter.

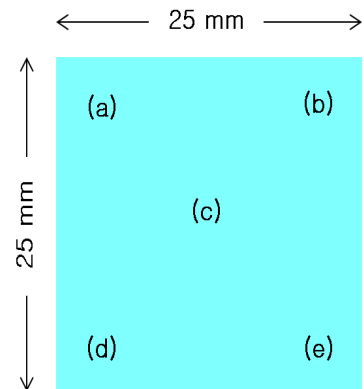


Fig. 2. Five locations where AFM images were taken.

약 30분 간 pre-sputtering을 실시하였다. 이후, 아르곤가스와 산소가스의 비율, 공정압력 및 RF power는 고정하고 스퍼터링 실험을 실시하였다.

기판온도를 상온과 200°C의 두 가지 조건으로 유지하면서 실험하였다. 기판 주변에 1~4개의 자석을 설치하여 0~90 Gauss까지 30 Gauss 만큼씩 증가시키면서 실험을 실시하였다.

유리기판 위에 증착된 ITO 박막의 두께는 알파스텝 (Sitek Alpha-step 200)을 사용하여 측정하였다. 면저항은 4-point probe (Modusystems SR-4-6L) 법을 이용하여 측정하였다. 박막의 투과율은 UV-Vis spectrometer (SHIMADZU UV-1650PC)를 사용하였으며, 홀효과 측정기 (ECOPIA HMS-3000)를 이용하여 이동도를 측정하였다. 마지막으로 자기장 세기의 변화량은 DC Gaussmeter (AlphaLab GM-1-ST)를 사용하여 측정하였다.

ITO 박막의 결정화 특성을 조사하기 위해 박막용 X선 회절분석기 (BRUKER AXS D8 ADVANCE)를 사용하여 박막의 우선방향 및 배향성을 관찰하였다. 또한, 박막의 결정립 성장의 경향과 결정-아결정립 (grain-subgrain)의 형성 여부를 관찰하기 위하여 전계방사형 주사전자 현미경 (JEOL: JSM-7401F)을 표면형상을 관찰하였다.

ITO 기판 주위의 자기장의 인가에 따른 플라즈마 왜곡에 따른 두께의 균일도를 분석하기 위해서 AFM (atomic force microscope)를 이용하여 표면형상을 관찰하였다. 그림 2는 표면 형상을 관찰한 5개의 위치를 보여주고 있다.

3. 결과 및 고찰

3.1 ITO 박막의 증착 환경에 따른 특성

기판을 가열하지 않고, 자기장을 인가하지 않은 조건 (normal), 4개의 자석을 기판 부근에 부착하여 90 Gauss의 자기장을 인가한 조건 (magnet), 기판 온도를 200°C로 가열하는 조건 (heat) 및 기판을 200°C로 가열하면서 4개의 자석을 기판 부근에 위치시켜서 90 Gauss의 자기장을 인가하는 조건 (mag&heat)의 4가지 조건에 따라 증착시간 변화에 따른 ITO 박막의 두께, 면저항, 및 투과율을 측정하였다.

그림 3은 여러 공정 조건에서 ITO 박막의 증착시간 변화에 따른 ITO 박막의 두께를 나타내고 있다. 증착율이 mag&heat 조건일 때 제일 높고 heat, magnet와 normal 조건 순으로 작아지고 있음을 보여주고 있다. 이는 자기장과 열에너지를 동시에 가하였을 때 가장 높은 증착율을 보여 주었고 magnet 보다는 200°C로 기판을 가열하면서 스퍼터링 공정을 수행하였을 때 더 높은 증착율을 보여 주었다.

ITO 박막의 전기적, 광학적 특성을 증착 조건의 변화에 따라서 조사하였다. ITO 박막의 결정구조, 결정성, 성장 방향 등을 조사하기 위해서 normal, magnet, heat, mag&heat 4가지 조건에서 증착을 하여 4개의 200 nm 두께의 ITO 박막을 제작하였다.

그림 4는 여러 공정조건에서 증착한 200 nm 두께를 갖는 ITO 박막의 SEM 사진을 보여주고 있다. 그림 4로부터 mag&heat 조건에서 증착한 ITO 박막의 입자 크기가 가장 크고 temp, magnet 및 normal 순으로 입자의 크기가 작아지는 것을 보여주고 있다.

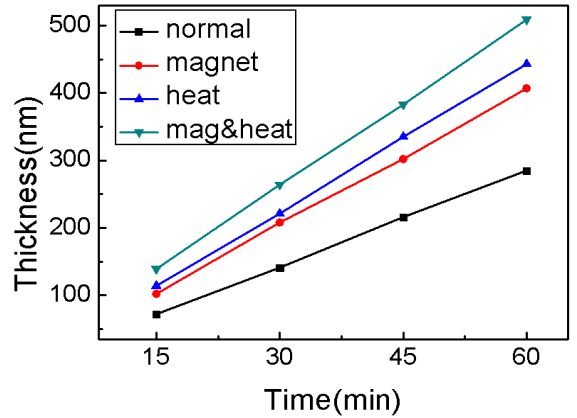


Fig. 3. Variation of ITO thin film thickness as a function of deposition time at different sputtering condition.

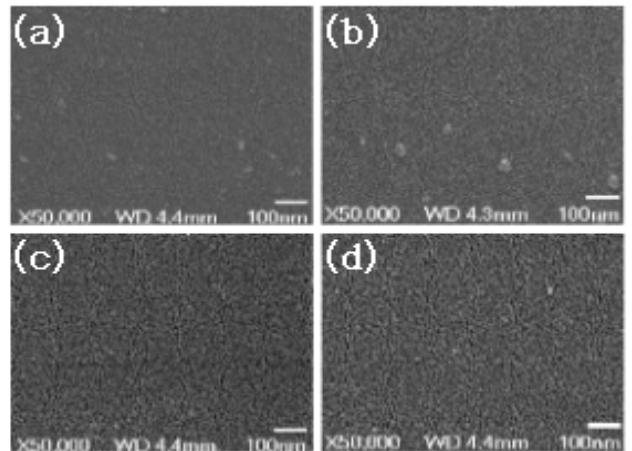


Fig. 4. SEM images of ITO thin films fabricated at different conditions. (a) normal, (b) magnet, (c) heat, (d) mag&heat.

이는 증착 공정에서 기판에 200°C를 인가하면서 자기장을 인가하는 것이 ITO 박막의 입자 성장에 가장 많은 영향을 미치는 것을 나타낸다. 200°C의 기판 온도일 때가 90 Gauss의 자기장을 인가했을 때보다 입자의 크기가 더 크게 나타났지만 자기장을 가했을 때가 normal인 상태보다는 입자의 크기가 더 크게 형성되었음을 보여 주고 있다. 이는 기판의 온도를 200°C로 인가하기 어려울 때에는 기판에 높은 자기장을 인가할 경우에 입자의 크기를 증가시킬 수 있다는 것을 나타낸다.

Table 1. Mobility of ITO thin films fabricated at different conditions.

	normal	magnet	heat	mag&heat
mobility ($cm^2/V.s$)	18.5	22.7	24.3	27.1
sheet resistivity ($10^{-4} \Omega \cdot cm$)	6.14	5.43	4.88	4.62

표 1은 여러 공정 조건에서 증착한 200 nm 두께의 ITO 박막의 이동도와 면저항을 나타내고 있다. 동일 두께의 박막이라도 mag&heat 조건에서 제작한 ITO 박막의 이동도가 제일 크고 temp, magnet, normal 순으로 이동도가 작아지는 것을 보여주고 있다. 또한 면저항은 mag&heat 조건에서 제일 작고 heat, magnet, normal 순으로 감소되고 있음을 보여주었다. 이것은 입자의 크기가 커지면 전자의 이동이 쉬워져서 이동도가 증가하고 면저항은 감소한다는 것을 나타낸다.

그림 5는 여러 공정조건에서 증착한 200 nm 두께의 ITO 박막의 XRD (x-ray diffraction) 분석 결과를 나타낸 것이다. 이 결과를 통해 결정 구조와 성장 방향에 대해 알 수 있었다. 우선 4가지 조건 모두에서 ITO의 결정을 구성하는 주성장 방향이 (222)과 (400) 면임을 알 수 있었다. 그 외 (211), (440), (622) 등의 peak가 관찰되었다. mag&heat 조건으로 제작한 박막의 결정성이 제일 큰 것으로 나타났고 다음에 heat, magnet 및 normal 순으로 박막의 결정성이 감소되고 있다는 것을 보여 주었다. 이것으로 미루어 보아 동일 두께의 ITO 박막 증착 시 기판 온도 및 기판 주위에 자기장을 형성하는 것이 결정 성장에 영향을 미친다는 것을 보여주고 있다.

기판 부근에 자기장을 인가하였을 때 ITO 박막의 결정성이 증가하여 이동도가 증가하는 것으로 보아서 동일한 시간 동안 증착하더라도 결정성이 우수하다면 이동도 또한 우수할 것으로 생각할 수 있다. 이에 따라 동일 시간을 증착할 때, 자기장의 세기에 따른 ITO 박막의 특성 및 미세조직을 조사하였다. 증착 시간은 30분으로 고정하고 자기장의 세기를 0, 30, 60, 90 Gauss로 변화하여 실험을 진행하였다.

그림 6은 자기장 세기의 변화에 따른 ITO 박막의 SEM 사진을 보여주고 있다. 그림 8의 SEM 사진에

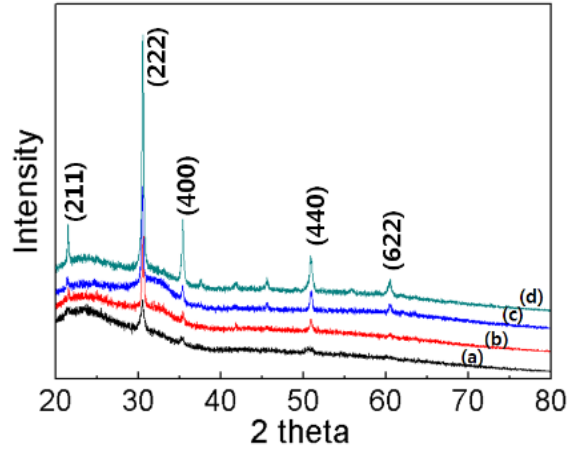


Fig. 5. XRD patterns of ITO thin films fabricated at different conditions. (a) normal, (b) magnet, (c) heat, (d) mag&heat.

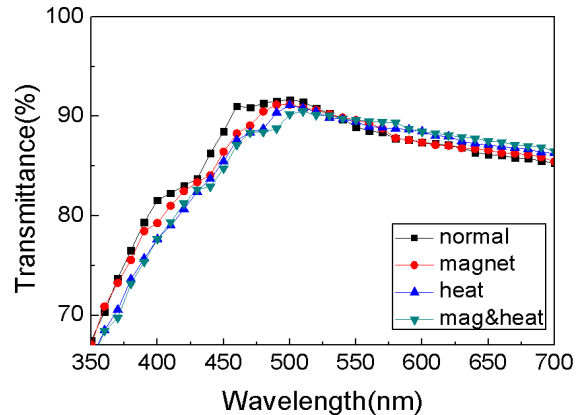


Fig. 6. Transmittance of ITO thin films fabricated at different conditions.

보여지는 것과 같이 자기장 세기가 클수록 입자의 크기가 커지는 것을 보여주고 있다. 이는 스퍼터링 공정 시 기판 주변에 자기장을 형성하는 것이 ITO 박막의 결정성 향상에 주요한 영향을 미친다는 것을 의미한다.

그림 7은 자기장 세기의 변화에 따른 ITO 박막의 SEM 사진을 보여주고 있다. 그림 8의 SEM 사진에 보여지는 것과 같이 자기장 세기가 클수록 입자의 크기가 커지는 것을 보여주고 있다. 이는 스퍼터링 공정 시 기판 주변에 자기장을 형성하는 것이 ITO 박막의 결정성 향상에 주요한 영향을 미친다는 것을 의미한다.

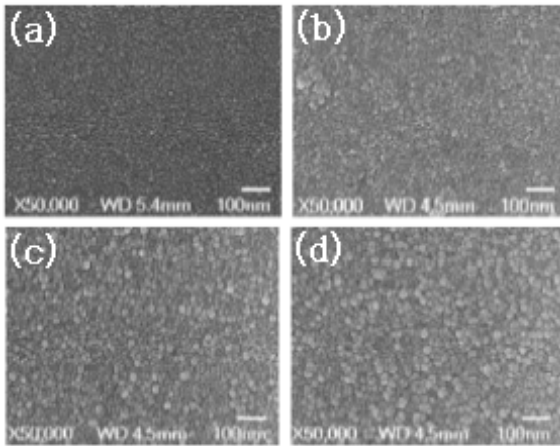


Fig. 7. SEM images of ITO thin films as a function of magnetic field intensity. (a) 0 Gauss, (b) 30 Gauss, (c) 60 Gauss, (d) 90 Gauss.

Table 2. Mobility and thickness of ITO thin films as a function of the change in magnetic intensity.

magnetic intensity (Gauss)	0	30	60	90
mobility ($cm^2/V.s$)	15.2	17.8	20.6	23.3
sheet resistivity ($10^{-4} \Omega \cdot cm$)	7.68	6.35	5.67	5.11
thickness (nm)	141	164	196	221

표 2는 자기장 세기의 변화에 따른 ITO 박막의 이동도, 면저항 및 두께를 보여주고 있다. ITO 박막의 이동도가 자기장의 세기가 클수록 높아지는 것을 보여주고 있다. 이는 이동도가 입자의 크기가 클수록 증가한다는 것과 일치한다. 또한 면저항은 자기장의 세기가 증가할수록 감소한다는 것을 보여주고 있다. ITO 박막의 두께는 자기장의 세기가 증가하고 있는 것을 보여주고 있다. 이는 기판 부근의 자기장의 세기가 증가가 플라즈마의 농도를 높여서 증착율을 높이고 입자의 크기도 증가시키는 것을 나타낸다.

그림 8은 자기장 세기의 변화에 따른 ITO 박막의 XRD 분석 결과를 나타낸 것이다. 모든 조건에서 ITO 박막의 (222), (400), (440)면의 peak가 검출되

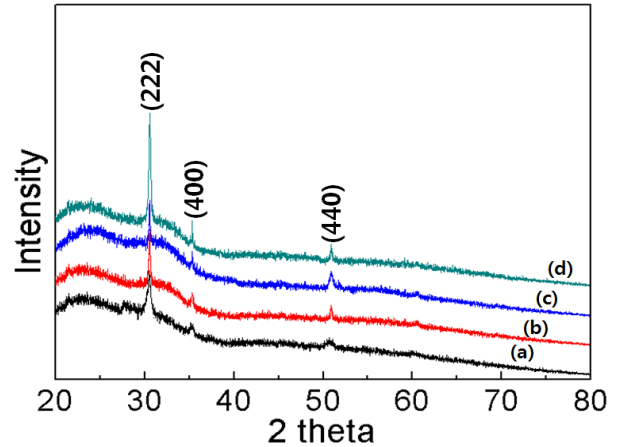


Fig. 8. XRD patterns of ITO thin films fabricated at different conditions. (a) 0 Gauss, (b) 30 Gauss, (c) 60 Gauss, (d) 90 Gauss.

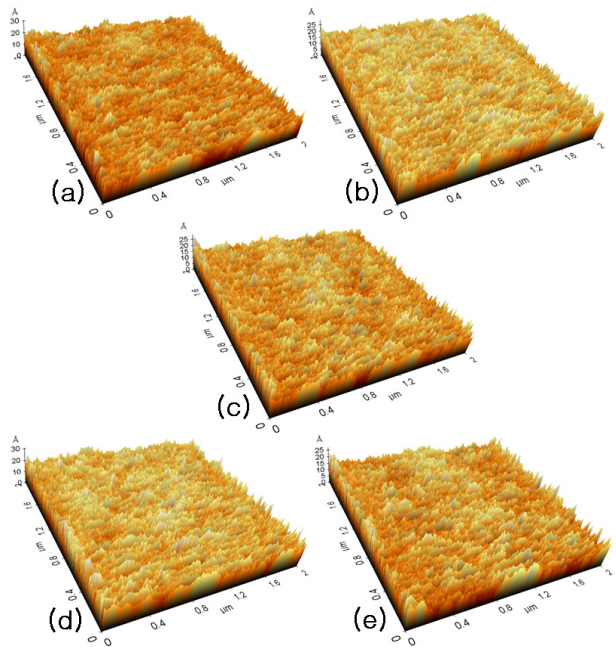


Fig. 9. AFM images of ITO thin film taken at five locations.

었다. (222)방향의 peak가 제일 크게 나타난 것으로 보아 대부분 ITO에서는 (222)면이 주 성장면 이라고 알려져 있는 것과 일치한다 [12].

그림 9는 기판 주위에 90 Gauss의 자기장을 인가하여 30분 동안 증착한 ITO 시편의 AFM image를 보여주고 있다. 90 Gauss의 자기장 인가에 의해서 플

Table 3. Root mean square (RMS) values of ITO thin film.

locations in Fig. 2	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)
RMS values of surface roughness of ITO thin film (Å)	2.3	2.7	2.8	2.4	2.7

라즈막 왜곡이 발생할 경우에 두께의 균일도(uniformity)를 분석하기 위해서 AFM을 이용하여 표면 형상을 관찰한 결과를 보여주고 있다. 그림 9(a)는 그림 2의 (a) 위치에서 관찰한 이미지, 그림 9(b)는 그림 2의 (b) 위치에서 관찰한 이미지, 그림 9(c)는 그림 2의 (c) 위치에서 관찰한 이미지, 그림 9(d)는 그림 2의 (d) 위치에서 관찰한 이미지이고 그림 9(e)는 그림 2의 (e) 위치에서 관찰한 이미지를 보여주고 있다. 표 3은 AFM 관찰 결과로부터 얻은 ITO 박막의 표면 거칠기의 실효값을 나타내고 있다.

표면 거칠기는 그림 2의 (a) 위치에서는 2.3 Å, (b) 위치에서는 2.7 Å, (c) 위치에서는 2.8 Å, (d) 위치에서는 2.4 Å와 (e) 위치에서 2.7 Å으로 상당히 양호한 것으로 나타났다. 이는 기판 주위의 플라즈마가 자기장에 의해서 왜곡이 되지 않았거나 왜곡이 되었다 하더라도 기판을 회전하면서 스퍼터링 공정을 수행하였기 때문에 박막이 고르게 성장하여서 기판 균일도에 영향을 미치지 않았음을 보여주고 있다.

4. 결론

본 연구에서는 RF 스퍼터의 타겟 부근에 자석을 부착하여 자기장을 형성하여 증착한 ITO 박막의 특성을 기판에 200°C를 유지하면서 증착한 ITO 박막과 비교하였다. 증착 시간, 박막 두께, 기판 온도, 자기장의 인가 유무, 자기장의 세기 등의 조건에 따라 증착하고 박막의 결정성과 성장 방향을 관찰하여 ITO 박막의 전기적, 광학적 특성을 측정된 결과, 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

동일한 시간 동안 ITO 박막을 증착했을 때, 기판을 상온으로 유지하면서 증착하였을 때보다 기판을 200°C로 유지하거나 기판 부근에 자기장을 인가하였을 때 ITO 박막의 입자의 크기가 더 크고 결정성이 향상되었음을 보여주었고 ITO 박막의 전기적 특성 또한 우수하였다. 마찬가지로 동일한 두께의 박막을 증착할 때, 200°C의 기판온도를 유지하면서 기판 부근에 자기장을 인가하

였을 때 입자의 크기가 크고 결정성도 높은 것을 보여 주었다. 이에 따라서 전기적 특성도 더 좋았다. 200°C로 기판온도를 유지하는 것이 기판 부근에 자기장을 인가하는 것 보다는 더 높은 결정성을 갖는 ITO 박막을 얻을 수 있었다. 그러나 자기장을 인가하면서 박막을 제작하여도 결정성이 향상되고 입자의 크기도 커지는 것을 확인하였다. 또한 자기장의 크기가 클수록 ITO 박막의 결정성도 좋아지고 입자의 크기도 커지는 것을 확인하였다. 기판 부근에 자기장의 크기를 증가시키면 기판에 온도를 인가하지 않고도 플라스틱과 같은 플렉시블 기판에 높은 전기전도도와 투과도를 갖는 ITO 박막을 증착시킬 수 있음을 알 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2011학년도 순천향대학교 교수 연구년제에 의하여 연구하였음.

REFERENCES

- [1] N. Basu, A. K. Batabyal, and A. K. Barua, *J. Appl. Phys.*, **54**, 6 (1983).
- [2] H. Sirringhaus, P. J. Brown, R. H. Friend, and M. M. Nielsen, *Nature*, **401**, 685 (1999).
- [3] J. S. Kim, R. H. Friend, and F. Cacialli, *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 3084 (1999).
- [4] S. Takaki, K. Matsumoto, and K. Suzuki, *Appl. Surf. Sci.* **33/34**, 919 (1988).
- [5] K. L. Chopra, S. Major, and D. K. Pandya, *Thin Solid Film* **102**, 1 (1983).
- [6] K. K. Yee, *Int. Met. Rev.* **23**, 19 (1978).
- [7] K. H. Ro, W. Park, G. Choe, and J. C. Ahn, *Kor. J. Mater. Res.*, **7**, 21 (1997).
- [8] J. B. Park, J. Y. Hwang, D. S. Seo, S. K. Park, D. G. Moon, and J. I. Han, *J. KIEEME*, **16**, 1115 (2003).
- [9] C. D. Dimitrakopoulous, S. Purushothaman, J. Kymissis, A. Calleari, and J. M. Show, *Science*, **283**, 882 (1999).
- [10] K. Bradley, J. P. Gabriel, and G. Gruner, *Nano Lett.*, **3**, 1353 (2003).
- [11] S. R. Forrest, *Nature*, **428**, 911 (2004).
- [12] H. C. Lee, J. Y. Seo, Y. W. Choi, and D. W. Lee, *Vacuum*, **72**, 269 (2004).