초음파 분무 열분해 증착 중 기판 회전 속도에 따른 플루오린 도핑 된 주석산화물 막의 전기적 및 광학적 특성

이기원·조명훈·안효진[†]

서울과학기술대학교 신소재공학과

Electrical and Optical Properties of Fluorine-Doped Tin Oxide Films Fabricated at Different Substrate Rotating Speeds during Ultrasonic Spray Pyrolysis Deposition

Ki-Won Lee, Myeong-Hun Jo, and Hyo-Jin Ahn[†]

Department of Materials Science and Engineering, Seoul National University of Science and Technology, Seoul 01811, Republic of Korea

(Received December 4, 2023: Revised December 7, 2023: Accepted January 12, 2024)

Abstract Fluorine-doped tin oxide (FTO) has been used as a representative transparent conductive oxide (TCO) in various optoelectronic applications, including light emitting diodes, solar cells, photo-detectors, and electrochromic devices. The FTO plays an important role in providing electron transfer between active layers and external circuits while maintaining high transmittance in the devices. Herein, we report the effects of substrate rotation speed on the electrical and optical properties of FTO films during ultrasonic spray pyrolysis deposition (USPD). The substrate rotation speeds were adjusted to 2, 6, 10, and 14 rpm. As the substrate rotation speed increased from 2 to 14 rpm, the FTO films exhibited different film morphologies, including crystallite size, surface roughness, crystal texture, and film thickness. This FTO film engineering can be attributed to the variable nucleation and growth behaviors of FTO crystallites according to substrate rotation speeds during USPD. Among the FTO films with different substrate rotation speeds, the FTO film fabricated at 6 rpm showed the best optimized TCO characteristics when considering both electrical (sheet resistance of 13.73 Ω/\Box) and optical (average transmittance of 86.76 % at 400~700 nm) properties with a figure of merit (0.018 Ω^{-1}).

Key words fluorine-doped tin oxide, substrate rotating speed, film morphology, figure of merit.

1. 서 론

전자 기술과 광학 기술이 복합된 광전자기술은 1907년 투명전도성 금속산화물 소재인 CdO가 처음 개발된 이래 크게 발전하고 있다.¹⁾ 특히, 현대에 들어서 반도체의 중요 성이 급격하게 대두되면서 특정 파장의 빛을 방출하는 광 전자 기술의 응용 분야가 많이 늘어나게 되었다. 이러한 광전자 기술의 발전에 따라 광전자 소자의 필수 구성 요소 중 하나인 투명전도막 또한 주목받게 되었고, 그 결과 투명전도막의 제조 공정에 대한 연구가 급격히 증가하게 되었다. 투명전도막은 액정 디스플레이(liquid crystal display, LCD), 발광다이오드 디스플레이(light emitting display, LED) 및 플라즈마 디스플레이(plasma display panel, PDP)와 같은 디스플레이 분야나 태양전지, 가스 센서 및 광촉매 등과 같은 다양한 분야에서 활용되고 있다.

투명전도막으로 사용되고 있는 금속산화물에는 ZnO

[†]Corresponding author

E-Mail: hjahn@seoultech.ac.kr (H.-J. Ahn, SEOULTECH)

© 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://creative-commons.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.

계, In₂O₃ 계 및 SnO₂ 계들이 대표적이며 이들 중에서도 현 재 가장 넓은 응용분야에서 상용화된 투명전도성 금속산 화물은 In₂O₃에 5~10 %의 SnO₂를 첨가한 인듐 주석 산화 물(indium tin oxide, ITO)이다. ITO의 경우 약 $2 \times 10^4 \Omega$. cm 미만의 낮은 비저항 및 가시광선 영역에서 80 % 이상 의 높은 투과도를 보이는 특성으로 인해 오늘날 디스플레 이나 터치패널에서 주로 사용되고 있다.²⁾ 하지만 ITO의 주 원료인 In의 경우 매장량이 적은 희귀 자원인데 반해 디 스플레이 및 터치패널의 수요가 급증하여 In의 가격이 지 속적으로 상승하고 있으며, 많은 수요 업체에서 안정적으 로 공급 가능한 원료를 찾고 있는 실정이다. 또한, ITO의 경우 100 nm 이상의 두께에서 기판이 구부러지거나 휘어 질 때 쉽게 크랙이 형성/전파되어 깨지는 특성으로 인해 플렉시블 투명전도막으로 활용되기에 어렵다는 단점을 가지고 있다.³⁾ 따라서 이러한 ITO의 단점 및 한계점을 극 복하기 위한 대체 투명전도막 소재에 관한 연구의 중요성 이 커지고 있다.

ITO를 대체할 수 있는 소재로 언급되는 투명전도성 금속 산화물로는 알루미늄 도핑 된아연 산화물(aluminum-doped zinc oxide, AZO), 갈륨 도핑 된 아연 산화물(gallium-doped zinc oxide, GZO), 및 불소 도핑 된 주석 산화물(fluorine-doped tin oxide, FTO) 등이 있다. 그 중에서도 FTO의 경우 가시광선 영역에서 80 % 이상의 높은 투과율 및 10⁻⁴~10⁻³ Ω·cm 수준의 비교적 낮은 비저항을 가지고 있으며, 원료의 매장량이 많아 가격이 상대적으로 낮고 수급이 원활하고, 더불어 열적 안정성 및 유연 안정성이 뛰어나다는 장점을 가지고 있어 ITO를 대체할 수 있는 소재로서 주목받고 있다. 4⁻¹ 그렇기에 이러한 FTO 막의 제조 과정에서의 공정변수 제어에 따른 전기적 및 광학적 특성 향상 연구는고성능 FTO 막 제조를 위한 중요한 전략으로서 적용될 가능성이 높다고 여겨진다.

최근 FTO를 전기전도도가 뛰어난 다른 물질과 복합화하여 미세구조에 변화를 주거나 FTO의 표면 형상의 제어에 따른 전기적 및 광학적 특성 변화에 대해 많은 보고가이루어지고 있다.⁵⁾ 그 중 FTO 막의 표면 형상을 제어하는 방식의 경우 다른 소재와의 복합화를 하는 공정보다 더 적은 비용 및 쉬운 난이도로 인해서 더 우수한 상용화 범용성 및 접근성을 가지고 있다고 할 수 있다. 본 연구에서는 초음파 분무 열분해 증착(ultrasonic spray pyrolysis deposition, USPD) 공정 중 기판의 회전 속도를 제어하여 FTO 막의 형상 및 결정구조를 변화하고자 하였다. 그리고 이러한 FTO 막의 형상 및 결정구조의 변화에 따른 전기적 및 광학적 특성을 측정하였고, 이들의 상관관계에 대해서 명확하게 규명 및 보고한다.

2. 실험 방법

모든 FTO 투명전도막은 USPD 공정을 통해 유리 기판 (Eagle XG, Corning) 위에 제조하였다. 먼저, Eagle XG 기 판은 Sonication 장비를 이용해 아세톤, 에탄올 및 증류수 의 순서로 각각 15분씩 초음파 처리하여 세척하여 준비하 였다. USPD 증착을 위한 FTO 프리커서 용액은 5 vol%의 ethyl alcohol (C₂H₅OH, Duksan)과 95 vol%의 증류수가 혼 합된 용매에 0.68 M의 tin chloride pentahydrate (SnCl4· 5H₂O, Samchun)과 1.20 M의 ammonium fluoride (NH₄F, Junsei)를 첨가하여 6시간동안 상온에서 혼합하여 준비하 였다. 그 후, 회전속도에 따른 FTO 투명전도막의 제조를 위해서 프리커서 용액의 가열로 내 위치한 기판의 회전속 도를 각각 2, 6, 10 그리고 14 rpm으로 조절하여 FTO를 기 판위에 증착 시켜 제조하였으며, 본 논문에서는 각각의 샘 플들에 대해서 FTO RPM 2, FTO RPM 6, FTO RPM 10 및 FTO RPM 14로 표기하였다. USPD 공정 과정에서 기판의 회전 속도 외에는 모든 공정 변수들(프리커서 분무량, 가 열로 온도 및 캐리어 가스의 종류 및 주입 속도)은 모든 FTO 샘플들에 대해서 동일하게 적용되었다.

제조된 FTO 투명전도막의 전기적 특성은 홀 효과 측정 시스템(hall-effect measurement system, Ecopia HMS-3000)을 이용하여 측정되었다. 또한 광학적 특성을 확인하기 위해서 자외선-가시광선 분광 광도계(ultraviolet-visible spectroscopy, Perkin-Elmer Lambda-35)를 이용하여 파장에 따른 투과도를 측정하였다. 그리고 제조된 FTO 막의 표면 및 단면의 형상을 확인하기 위해 전계 방사형 주사전자현미경(field-emission scanning electron microscopy, FE-SEM, Hitachi S-4800)을 이용하였다. FTO 막의 결정 구조 및 화학적 결합 상태 분석을 위해서 각각 X-선 회절 분석(X-ray diffraction, XRD, Rigaku 2500), X-선 광전자 분석법(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS, ESCALAB 250 equipped with an Al Ka X-ray source)을 이용하였다.

3. 결과 및 고찰

FTO 막은 USPD를 통해서 제조되었으며, USPD는 초음 파 분무로 인해서 형성된 프리커서 액적을 반응로 내 가열 된 목표 기판으로 균일하게 공급하고, 이어진 열분해 과정을 통해서 균일한 두께의 산화물 막을 만들 수 있는 공정이다. 일반적으로 FTO 막의 균일한 증착을 위해서 USPD 과정에서 일정한 속도로 기판을 회전시키는데, 본 논문에서는 이러한 USPD 과정 중 서로 다른 기판의 회전 속도에 따른 FTO 막의 전기적 및 광학적 특성 변화에 대해서 보

고한다. 제작한 FTO 막들의 결정 구조를 알기 위해 X-선 회절 분석(XRD)을 실시하였고 Fig. 1(a)에 그 결과를 나타 내었다. 각각의 샘플들 모두 26.55°, 33.82°, 37.86°, 51.73°, 61.89°, 65.97° 및 78.72°에서 공통적으로 특성 회절 피크 들이 나타났으며, 이는 tetragonal rutile 구조를 갖는 SnO₂ 의 (110), (101), (200), (211), (310) 및 (301) 결정면(JCPDS #41-1445)과 각각 일치한다. 또한, 모든 샘플들의 회절 피 크 위치가 순수한 SnO₂ 대비 약간 낮은 각도로 이동된 경 향을 보이는데, 이는 브래그 법칙 $(n\lambda = 2d\sin\theta)$ 에 의해 상 대적으로 이온 반경이 큰 F 이온이 이온 반경이 더 작은 O²⁻ 자리에 치환 도핑 된 결과로 성공적인 FTO 상의 제작 을 의미한다. 특히, (200) 피크와 (301) 피크의 회절 강도를 더 잘 비교하기 위해서 Fig. 1(b)에 확대된 XRD 패턴 결과 를 도시하였고, 제작한 FTO 막들에 대해서 (301) 대비 (200) 회절 피크의 강도 값들을 Fig. 1(c)에 도시하였다. 그 결과, FTO RPM 2, FTO RPM 4, FTO RPM 10 및 FTO RPM 14는 각각 6.14, 5.56, 5.32 및 3.36의 값을 보였으며, 이는 기판의 회전 속도가 증가함에 따라 (301) 대비 (200) 회절 피크의 강도는 감소하는 경향을 보였다. 특히, 기판의 회 전 속도가 가장 빠른 FTO RPM 14 샘플에서는 그 외 샘플

들 대비 대폭 감소된 (301) 대비 (200) 회절 피크 강도 값을 보였는데, 이러한 결과는 기판의 회전 속도가 USPD를 통해 제작된 FTO 막의 결정 구조에 영향을 미치는 것을 확인시켜준다. FTO의 결정 구조와 (301) 및 (200) 면에 해당하는 그림을 Fig. 1(d)에 도시하였다. 기존에 보고된 SnO2막의 결정 구조에 관한 보고에 따르면, (200) 면은 기판과 평행한 방향으로의 SnO2 결정의 성장을 의미하고, (301)면은 기판과 수직한 방향으로의 SnO2 결정의 성장을 의미하며, 특히 (301)면의 성장은 특히 각진 피라미드 모양의 SnO2 결정립의 형성과도 연결된다. 하따라서, 이러한 (301)대비 (200)회절 피크의 강도 값은 기판 회전 속도가 증가함에 따라 FTO 막을 구성하는 결정립의 성장 및 형상이변화될 수 있음을 의미한다.

제작된 FTO의 막의 화학적 결합을 확인하기 위해서 X-선 광전자 분석법(XPS)을 진행하였으며 C 1s (284.5 eV)를 기준으로 모든 원소 별 존재하는 화학적 결합을 피팅하여 Fig. 2에 나타내었다. 제작된 모든 FTO 막들의 O 1s 및 Sn 3d XPS 결과를 Fig. 2(a) 및 Fig. 2(b)에 각각 도시하였다. O 1s XPS 결과를 통해서 FTO RPM 2, FTO RPM 6, FTO RPM 10, FTO RPM 14 각각의 샘플 공통적으로 약

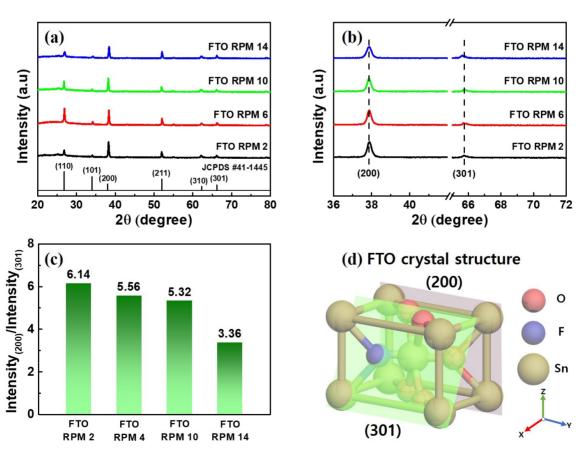
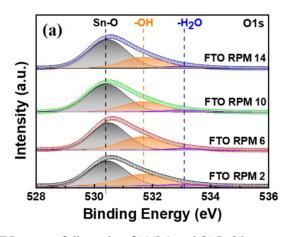


Fig. 1. (a) XRD patterns of all samples in a range of 20~80 degree, (b) enlarged XRD patterns of all samples in a range of 36~72 degree, (c) XRD peak intensity ratio of (200) and (301) for all samples, and (d) scheme of crystal structure of FTO with (200) and (301) plane.

530.4, 531.7 및 533.1 eV 위치에 각각 Sn-O, -OH 및 -H₂O 에 해당하는 화학적 결합을 보였으며, Sn 3d XPS 결과를 통해서 제작한 FTO 막 공통적으로 약 486.6, 487.7, 495.1 및 496.3 eV 위치에 각각 Sn $3d_{5/2}$ 의 Sn⁴⁺ 및 Sn-F 그리고 Sn $3d_{3/2}$ 의 Sn⁴⁺ 및 Sn-F에 해당하는 화학적 결합을 보였다. ⁷⁾ 이러한 XPS 결과는 제작된 모든 FTO 막들에 대해서 성공적으로 플루오린 도핑 된 SnO₂ 상이 형성되었음을 보여주며, 이는 앞선 XRD 결과와 일치하는 결과를 보여준다.

기판의 회전 속도에 따른 FTO 막의 형상을 분석하기 위하여 주사전자 현미경(FE-SEM)을 이용하였으며, Fig. 3 및 Fig. 4에 모든 막에 대한 top-view 및 cross-view FE-SEM이미지를 나타내었다. Fig. 3의 top-view FE-SEM 이미지

결과를 통해서 제작한 모든 FTO 막들이 피라미드 모양의 팔면체 FTO 결정립이 균일하게 덮여 있고, 그 사이를 비교적으로 불규칙한 형상을 가진 작은 FTO 결정립이 메우고 있는 막의 형상을 가지고 있음을 확인할 수 있었고, 이러한 균일한 막의 형상은 FTO 입자 사이의 연속적인 전기전도성을 부여하여 FTO 막의 우수한 전기적 특성 결과로 이어질 수 있다. 특히, Fig. 3(a)의 FTO RPM 2에서 Fig. 3(d)의 FTO RPM 14으로 기판의 회전 속도가 증가할수록이러한 피라미드 모양의 팔면체 FTO 결정립의 크기 및 개수가 커지고 상대적으로 불규칙한 형상의 작은 FTO 결정립의 개수가 줄어드는 경향을 보인다. 각각의 샘플들에 대해서 피라미드 형상의 팔면체 FTO 결정립의 크기를 측정



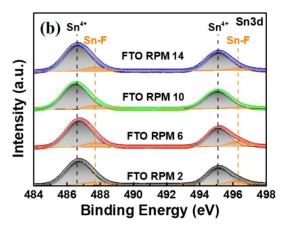


Fig. 2. XPS spectra of all samples of (a) O 1s and (b) Sn 3d.

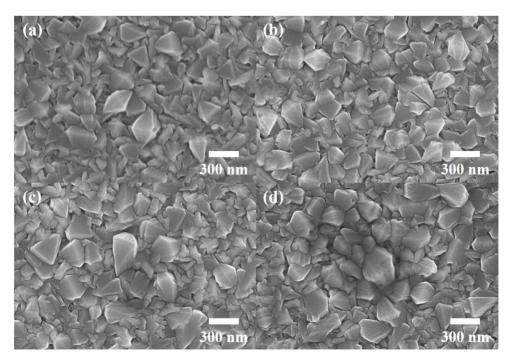


Fig. 3. Top-view FE-SEM images of (a) FTO RPM 2, (b) FTO RPM 6, (c) FTO RPM 10, and (d) FTO RPM 14.

한 결과 Fig. 3(a)의 FTO RPM 2에서 ~264.75 nm, Fig. 3(b) 의 FTO RPM 6에서 ~292.25 nm, Fig. 3(c)의 FTO RPM 10 에서 ~335.25 nm 및 Fig. 3(d)의 FTO RPM 14에서 ~353.25 nm의 평균 입자 크기 값을 보였으며, 이를 통해서 기판의 회전 속도가 증가함에 따라 피라미드 형상의 팔면체 FTO 결정립의 크기가 증가하는 경향을 보이는 것을 알 수 있었 다. 일반적으로 USPD를 통한 FTO 막의 증착은 다음의 과 정을 통해 이루어진다: 1) 초음파 분무 된 액적의 기판 위 도달, 2) 열에 의한 액적의 증발 및 기판 위 핵 생성, 3) 작은 클러스터 핵 성장 및 임계 핵 크기 도달 및 4) 필름화.⁸⁾ 비 교적 낮은 기판 회전 속도 환경에서는 초음파 분무된 FTO 프리커서 액적이 기판 위 도달한 후, 비교적 완화된 불균 질 핵 생성 및 성장에 의해서 서로 비슷한 크기의 결정 성 장을 유도하는 반면, 기판 회전 속도가 증가함에 따라 초 음파 분무된 FTO 프리커서 액적이 기판 위 도달한 후, 비 교적 가속화된 불균질 핵 생성 및 성장에 의해서 비교적 큰 크기의 피라미드 모양의 팔면체 FTO 결정립 성장을 촉진하게 된다. Fig. 4의 cross-view FE-SEM 이미지 결과 를 통해서 Fig. 4(a)의 FTO RPM 2의 경우~387.27 nm, Fig. 4(b)의 FTO RPM 6의 경우 ~454.55 nm, Fig. 4(c)의 FTO RPM 10의 경우~511.36 nm 및 Fig. 4(d)의 FTO RPM 14의 경우~556.82 nm의 두께를 가지고 있는 것을 확인하였고. 기판 회전 속도가 증가함에 따라 FTO 막의 두께가 증가하 는 것을 알 수 있었다. 이는 기판의 회전 속도 증가에 따른 FTO 결정립의 기판과 수직한 방향인 (301) 결정면의 성장 으로 인한 피라미드 형상의 FTO 결정립의 성장에 의한 결과와 연관되며, 이러한 피라미드 형상의 결정립 성장은 Fig. 4(c) 및 Fig. 4(d)의 FTO RPM 10 및 FTO RPM 14 샘플의 cross-view FE-SEM 이미지에서 확인할 수 있다. 이러한 과도한 피라미드 형상의 결정립 성장은 FTO 막의 거칠기를 증가시켜 가시광선 영역 투과도를 감소시키는 요인으로 작용할 수 있다.

서로 다른 기판 회전 속도에 따라 제조된 FTO 막의 광 학적 및 전기적 특성 평가 결과를 Fig. 5 및 Table 1에 도시 하였다. Fig. 5(a)의 자외선-가시광선 분광 광도계를 이용 하여 300~900 nm 범위 내 제조된 FTO 막의 투과도 변화 를 측정하였다. 이 중 가시광선 범위(400~700 nm)에서의 투과도 평균 값을 계산한 결과, FTO RPM 2에서 86.95 %, FTO RPM 6에서 86.76 %, FTO RPM 10에서 84.52 % 및 FTO RPM 14에서 82.41 %를 나타내었다. 기판 회전 속도 가 증가함에 따라 가시광선 영역 투과도 평균 값이 감소하 는 경향을 보였으며, 특히 FTO RPM 10 및 FTO RPM 14에 서 감소된 투과도 값을 나타내었다. 이는 앞선 FE-SEM 이 미지를 결과를 통해 확인된 것과 같이, 기판 회전 속도가 증가함에 따라 피라미드 형상의 FTO 결정립 성장이 가속 화되고, 이에 의한 FTO 막의 거칠기가 증가하게 되어 입 사된 빛이 막 표면에서 산란 현상을 더 많이 발생시키기 때문이다.⁹⁾ Fig. 5(b)는 각 샘플의 광학적 밴드 갭 에너지 를 나타낸 것으로 자외선-가시광선 분광 광도계를 통해 측정된 투과도를 식 (1)의 Tauc's equation을 통해서 계산

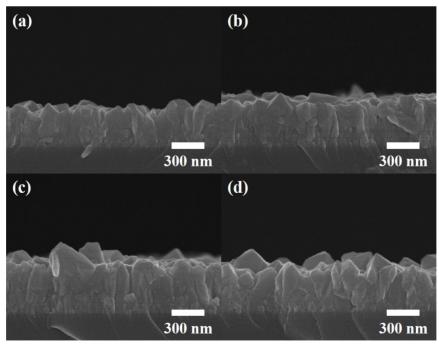


Fig. 4. Cross-view FE-SEM images of (a) FTO RPM 2, (b) FTO RPM 6, (c) FTO RPM 10, and (d) FTO RPM 14.

한 결과이다.¹⁰⁾

$$(\alpha h v)^{1/n} = A (h v - E_g) \tag{1}$$

여기서, α 는 흡수 계수, h는 플랑크 상수, E_g 는 광학적 밴드 갭 에너지, v는 광자의 주파수, A는 비례상수 및 n은 Tauc 지수를 의미한다. 결과적으로 FTO RPM 2에서 3.91 eV, FTO RPM 6에서 3.87 eV, FTO RPM 10에서 3.80 eV 및 FTO RPM 14에서 3.78 eV의 광학적 밴드 갭 에너지를 보

였으며, 기판 회전 속도가 증가함에 따라 광학적 밴드 갭에너지가 감소하는 경향을 보이는 것을 확인하였다. Fig. 5(c)는 홀 효과 측정시스템을 이용하여 측정된 각 FTO 막의 비저항, 전하 농도, 전하 이동도와 같은 FTO 막의 전기적 특성을 측정한 결과를 도시하였으며, 구체적인 수치들은 Table 1에 요약되었다. 전하 농도의 경우 기판 회전 속도가 증가함에 따라 증가하는 경향을 보이는데, 이는 앞선 cross-view FE-SEM을 통해 확인된 것과 같이, 기판 회전속도 증가에 따른 FTO 막의 두께 증가에 기인된 결과이다.

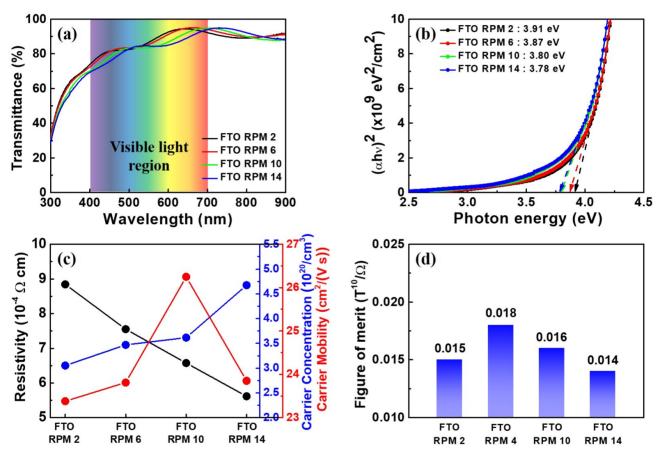


Fig. 5. (a) Transmittance curves of all samples in a wavelength range of 300~900 nm, (b) optical band gap calculated from the relationship between (αhv)2 and photon energy, (c) plots of resistivity, carrier concentration, and carrier mobility of all samples, and (d) FOM of all samples.

Table 1. Summarized electrical and optical properties of all samples.

FTO RPM 2	FTO RPM 6	FTO RPM 10	FTO RPM 14
-2.760×10^{20}	-3.328×10^{20}	-3.502×10^{20}	-4.322 × 10 ²⁰
23.38	23.81	26.25	23.85
8.845×10^{-4}	7.552×10^{-4}	6.576×10^{-4}	5.616×10^{-4}
16.08	13.73	11.96	10.21
86.95	86.76	84.52	82.41
0.015	0.018	0.016	0.014
	-2.760×10^{20} 23.38 8.845×10^{-4} 16.08 86.95	$-2.760 \times 10^{20} \qquad -3.328 \times 10^{20}$ $23.38 \qquad 23.81$ $8.845 \times 10^{-4} \qquad 7.552 \times 10^{-4}$ $16.08 \qquad 13.73$ $86.95 \qquad 86.76$	-2.760×10^{20} -3.328×10^{20} -3.502×10^{20} 23.38 23.81 26.25 8.845×10^{-4} 7.552×10^{-4} 6.576×10^{-4} 16.08 13.73 11.96 86.95 86.76 84.52

전하 이동도의 경우 기판 회전 속도가 증가함에 따라 FTO RPM 10까지는 증가하다가 FTO RPM 14 샘플에서 급격 하게 감소하는 것을 알 수 있다. FTO RPM 10까지의 전하 이동도 증가는 피라미드 형상의 FTO 결정립의 크기 증가 에 따른 결정립과 결정립 계면에서 서로 다른 격자 구조로 인한 전하 입계산란 현상이 완화되기 때문이다.¹¹⁾ 하지만 FTO RPM 14 샘플의 경우 가장 가속화된 피라미드 형상 의 FTO 결정립 성장에도 불구하고, Fig. 1(c)에서 확인되 었던 (301) 대비 (200) 회절 피크의 급격한 감소로 인한 결 과이다. FTO의 경우 일반적으로 (200) 결정면 방향으로의 전하 이동이 가장 저항이 적어서 전하 이동에 유리하며, (301) 결정면 방향으로의 전하 이동은 상대적으로 저항이 커서 전하 이동이 어려운 것으로 알려져 있다.⁶⁾ 결과적으 로 FTO 막의 전기적 성질을 나타내는 비저항의 경우 이러 한 전하 농도 및 전하 이동도로 구성된 식(2)를 통해서 구 할 수 있다.¹²⁾

$$\rho = 1/(\mu e N) \tag{2}$$

여기서, ρ 는 저항, μ 는 홀 이동도, e는 전자 한 개의 전하량 $(1.60\times10^{19}\,\mathrm{C})$ 및 N은 전하 농도를 뜻한다. 기판의 회전 속도에 따라 제조된 FTO 막의 비저항 값은 각각 FTO RPM 2에서 8.845×10^4 , FTO RPM 6에서 7.552×10^4 , FTO RPM 10에서 6.576×10^4 및 FTO RPM 14에서 $5.616\times10^4\,\Omega$ · cm의 값을 나타냈으며, 이를 통해 기판 회전 속도가 증가함에 따라 FTO 막의 비저항 값이 감소하는 경향을 보이는 것을 확인할 수 있다. 투명전도막의 전기적 및 광학적 성능을 모두 고려하는 지표인 성능 지수(figure of merit, FOM)를 제조된 FTO 막들에 대해서 각각 식 (3)을 통해서 계산하였다. 13

Figure of merit=
$$T^{10}/R_S$$
 (3)

여기서, T는 투과도 그리고 R_s 는 면저항을 의미한다. 면저항의 경우 홀 효과 측정시스템을 통해서 측정하였으며, FTO RPM 2, FTO RPM 6, FTO RPM 10 및 FTO RPM 14에서 각각 16.08, 13.73, 11.96 및 10.21 Ω / \square 의 값을 나타내었다. Fig. 5(d)는 위의 식을 통해 계산된 각 샘플의 성능 지수를 비교한 것으로 FTO RPM 2에서 $0.015~\Omega^{-1}$, FTO RPM 6에서 $0.018~\Omega^{-1}$, FTO RPM 10에서 $0.016~\Omega^{-1}$ 및 FTO RPM 14에서 $0.014~\Omega^{-1}$ 의 값을 나타내었으며, FTO RPM 6에서 가장 좋은 성능 지수를 보이는 것을 확인하였다. 이는 기판의 회전 속도가 증가함에 따라 FTO 막의 거칠기 및 두

께 증가에 따른 빛의 산란효과가 커져 투과도가 감소하는 효과와 전하 농도 증가 및 입계산란 감소에 따른 면저항이 감소하는 효과가 동시에 나타나기 때문이며, FTO RPM 6 샘플에서 가장 우수한 FOM 값과 함께 가장 최적의 전기적 및 광학적 특성을 보이는 것을 알 수 있었다.

4. 결 론

본 연구에서는 USPD 과정 중 다양한 기판 회전 속도에 따른 FTO 막을 제작하였고, 이들의 결정 구조, 화학적 결 합 상태 및 막 형상의 변화를 관찰하였고, 이에 따른 FTO 막의 전기적 및 광학적 특성을 비교하였다. 기판의 회전 속도가 증가함에 따라 (301) 대비 (200) 결정면의 성장이 감소하는 경향을 보였으며, 형상적인 측면에서는 피라미 드 모양의 팔면체 FTO 결정립의 크기가 증가하고 이로 인 해 막의 거칠기가 증가하는 경향을 보였다. 기판의 회전 속도에 따른 이러한 FTO 막의 변화로 인해서 광학적인 측 면에서 기판의 회전 속도가 증가함에 따라 가시광선 영역 에서의 투과도 값이 감소하게 되지만, 전기적인 측면에서 는 면저항이 감소하는 경향을 보였다. 특히, FTO RPM 14 의 샘플에서 빠른 기판 회전 속도로 인해서 급격하게 감소 한 (301) 대비 (200) 피크 비율 및 피라미드 모양의 FTO 결 정립의 과도한 성장으로 인해 가시광선 영역 내 투과도가 급격한 감소율을 보였다. 결과적으로 FTO RPM 6 샘플에 서 최적화된 전기적 특성(면저항 11.96Ω) 및 광학적 특성 (400~700 nm 영역에서 평균 투과도 86.76 %)으로 인해서 가장 우수한 FOM $(0.018 \, \Omega^{-1})$ 값을 보이는 것을 확인하였 다. 이러한 결과는 초음파 분무 열분해 공정 중 기판의 회 전 속도 제어를 통한 FTO 막의 유의미한 투명전도 성능 향상에 도움을 줄 수 있는 전략으로 활용될 수 있음을 확 인하였다.

Acknowledgement

This work was supported by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIT) (RS-2023-00209244).

References

- D. M. Carballeda-Galicia, R. Castanedo-Pérez, O. Jiménez-Sandoval, S. Jiménez-Sandoval, G. Torres-Delgado and C. I. Zúñiga-Romero, Thin Solid Films, 371, 105 (2000).
- 2. C. G. Granqvist and A. Hultåker, Thin Solid Films, 411, 1

(2002).

- 3. K. A. Sierros, N. J. Morris, K. Ramji and D. R. Cairns, Thin Solid Films, **517**, 2590 (2009).
- 4. S. Yu, L. Li, X. Lyu and W. Zhang, Sci. Rep., **6**, 20399 (2016).
- B.-J. Li, M. Zhou, M. Ma, W. Zhang and W.-Y. Tang, Appl. Surf. Sci., 265, 637 (2013).
- M.-H. Jo, B.-R. Koo, K.-H. Kim and H.-J. Ahn, Chem. Eng. J., 431, 134036 (2022).
- 7. M.-H. Jo, B.-R. Koo and H.-J. Ahn, Ceram. Int., **46**, 25066 (2020).
- 8. O. Vigil, L. Vaillant, F. Cruz, G. Santana, A. Morales-Acevedo and G. Contreras-Puente, Thin Solid Films, **361-362**, 53 (2000).
- 9. J. Krč, M. Zeman, O. Kluth, F. Smole and M. Topič, Thin Solid Films, **462**, 296 (2003).
- 10. A. Dolgonos, T. O. Mason and K. R. Poeppelmeier, J. Solid State Chem., **240**, 43 (2016).

- 11. W. Wu, S. H. Brongersma, M. Van Hove and K. Maex, Appl. Phys. Lett., **84**, 2838 (2004).
- 12. F. Lacy, Nanoscale Res. Lett., 6, 636 (2011).
- J. A. Mendez-Gamboa, R. Castro-Rodriguez, I. V. Perez-Quintana, R. A. Medina-Esquivel and A. Martel-Arbelo, Thin Solid Films, 599, 14 (2016).

<저자소개>

이기원

서울과학기술대학교 신소재공학과 학생

조명훈

서울과학기술대학교 신소재공학과 학생

아효진

서울과학기술대학교 신소재공학과 교수