[논 문] 한국재료학회지 Kor. J. Mater. Res. Vol. 24, No. 3 (2014)

# 저온 공정을 이용한 용액 기반 $Sb ext{-}doped\ SnO_2$ 투명 전도막의 전기적 및 광학적 특성

구본율·안효진<sup>†</sup>

서울과학기술대학교 신소재공학과

# Electrical and Optical Properties of Solution-Based Sb-Doped SnO<sub>2</sub> Transparent Conductive Oxides Using Low-Temperature Process

Bon-Ryul Koo and Hyo-Jin Ahn<sup>†</sup>

Department of Materials Science and Engineering, Seoul National University of Science and Technology, Seoul 139-743, Korea

(2014년 2월 28일 접수: 2014년 3월 15일 최종수정: 2014년 3월 17일 채택)

Abstract Solution-based Sb-doped  $SnO_2$  (ATO) transparent conductive oxides using a low-temperature process were fabricated by an electrospray technique followed by spin coating. We demonstrated their structural, chemical, morphological, electrical, and optical properties by means of X-ray diffraction, X-ray photoelectron spectroscopy, field-emission scanning electron microscopy, atomic force microscopy, Hall effect measurement system, and UV-Vis spectrophotometry. In order to investigate optimum electrical and optical properties at low-temperature annealing, we systemically coated two layer, four layer, and six layers of ATO sol-solution using spin-coating on the electrosprayed ATO thin films. The resistivity and optical transmittance of the ATO thin films decreased as the thickness of ATO sol-layer increased. Then, the ATO thin films with two sol-layers exhibited superb figure of merit compared to the other samples. The performance improvement in a low temperature process (300 °C) can be explained by the effect of enhanced carrier concentration due to the improved densification of the ATO thin films causing the optimum sol-layer coating. Therefore, the solution-based ATO thin films prepared at 300 °C exhibited the superb electrical ( $\sim 7.25 \times 10^{-3} \, \Omega \cdot cm$ ) and optical transmittance ( $\sim 83.1 \, \%$ ) performances.

Key words transparent conductive oxides, Sb-doped SnO<sub>2</sub>(ATO), low temperature process, electrospray, spin-coating.

#### 1. 서 론

최근 다양한 optoelectronic device(예, touch screens, liquid crystal displays, organic solar cells, organic light emitting devices등)들의 개발 및 활용이 증가되면서, 우수한 전기적( $\rho \le 10^{-3}\,\Omega$ ·cm) 및 광학적(transmittance  $\ge 80$ %) 특성이 요구되고 있는 투명 전도성 산화물(TCOs, transparent conductive oxides)에 대한 관심과 수요가 증가하고 있다.  $^{1-4}$ 이러한 특성을 만족하는 TCO 물질에는 대표적으로 SnO $_2$ :F(FTO), In $_2$ O $_3$ :Sn(ITO), ZnO:Al(AZO), ZnO:Ga(GZO), SnO $_2$ :Sb(ATO) 등이 현재까지 활발히 연

구되고 있다. 이런 TCO물질 중에서도 ITO는 현재 우수한 투과도(≥90%) 및 전기적(<10<sup>-3</sup>Ω·cm) 특성, 높은 일함수(>4.8 eV), 우수한 에칭 성능 등의 장점으로 인해 상업적으로 활발히 적용되고 있다. 그러나 ITO를 구성하고 있는 In은 급격한 수요 상승 및 공급량 부족의 결과로 인하여 연속적인 가격 상승을 보이고 있다. 또한 ITO는 열적 및 화학적 안정성이 낮아서 In과 Sn이 환원되어 빠져 나오는 단점이 있기 때문에 응용분야의 적용이 제한되고 있다.<sup>5)</sup> 따라서 최근 In을 대처할 수 있는 TCO 물질의 개발이 이슈로 부각되고 있다. 특히 ATO는 높은 전도성 및 투과도 특성뿐 만 아니라 우수한 열

E-Mail: hjahn@seoultech.ac.kr (H.-J. Ahn, Seoul Nat'l Univ. Sci. and Technol.)

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.

<sup>†</sup>Corresponding author

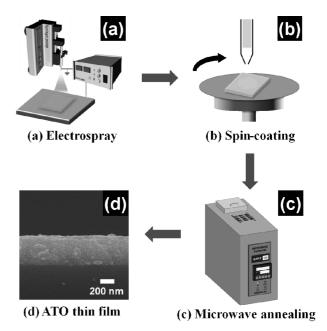
<sup>©</sup> Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

적 및 화학적 안정성, 풍부한 매장량, 저렴한 가격 등의 장점 때문에 최근 ITO 대체 물질로서 많은 관심을 받 고 있으며 학문적으로도 활발한 연구가 진행되고 있다. 현 재까지 우수한 특성을 갖는 ATO 박막의 제조법으로는 vacuum evaporation, chemical vapor deposition, RF magnetron sputtering 등이 사용되고 있다. 6-8) 하지만 이 러한 방법들은 진공분위기와 정교한 장비가 요구되기 때 문에 산업적으로 응용하기에 고비용이 요구된다.<sup>9)</sup> 따라 서, dip-coating, spin-coating, spray pyrolysis, inkjetprinting등이 용액 기반 제조 방법으로 보고 되고 있으 며 현재까지 솔루션 기반 ATO 박막을 제조하기 위한 연 구가 진행되고 있다. 10-13) 예를 들면, Burgard등은 sol-gel spin-coating법으로 ATO 박막을 제조하였고 550℃ 열처 리 온도에서의 광학적(~90%) 및 전기적(~37×10<sup>-3</sup>Ω·cm) 특성을 보고했다.<sup>11)</sup> Aegerter 등은 spray pyrolysis와 dipcoating으로 제조된 ATO 박막의 특성을 비교 하였고 그 결과 spray pyrolysis로 제조된 ATO박막의 우수한 전기 적 특성(~1.5 × 10<sup>-3</sup>Ω·cm)을 보고했다. <sup>12)</sup> 최근에는 입자 를 기반으로 한 ATO 잉크를 활용하여 ATO 박막을 제 조하는 inkjet-printing방법이 보고되었으며 700 ℃ 열처리 온도에서 ~61 × 10<sup>-3</sup>Ω·cm의 비저항 특성을 보였다. <sup>13)</sup> 이 렇듯 용액 기반 ATO 박막 제조의 경우 지금까지 높은 고온 열처리가 요구되어져 왔다. 이러한 특징들은 가격 경쟁력 뿐만 아니라 flexible같은 응용분야 활용에도 악 영향을 끼칠 수 있다. 그러므로 저온 열처리 조건에서 의 용액 기반 ATO 박막을 제조하는 연구는 매우 중요 한 연구 분야 중 하나이다.

따라서, 본 연구에서는 electrospray와 spin-coating법을 이용한 저온 공정 조건(300°C)에서 ATO 박막을 제조하였고 그들의 구조적, 화학적, 전기적 및 광학적 특성을 규명하였다.

### 2. 실험 방법

본 연구에서는 용액 기반의 합성 방법인 electrospray 와 spin-coating을 통해 ATO 박막을 제조하였다. 먼저 electrospray와 spin-coating에 사용될 ATO sol-solution을 제조하기 위해서 어떠한 정제과정 없이 Tin(II) chloride dihydrate(SnCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O, Aldrich) 전구체를 2-propanol ((CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CHOH, Aldrich)안에서 1시간 동안 용해시켰다. 또한 antimony(III) chloride(SbCl<sub>3</sub>, Aldrich)를 해당 혼합물에 첨가한 후 추가적으로 1시간 동안 용해하여 최종적으로 ATO sol-solution을 준비하였다. 이 때 Sn과 Sb 전구체의 molar ratio는 10:1로 고정시켰다. <sup>14,15)</sup> 다음으로, ATO를 glass기판 위에 증착하기 위해서 acetone, ethanol 및 de-ionized(DI) water에 각각 15분 동안 초음



**Fig. 1.** A schematic illustration for fabrication of solution-based ATO thin films using low temperature process.

파 세척하여 준비하였다. ATO의 초기 증착은 Fig. 1(a) 에 보여지는 electrospray과정을 통해 실시되었다. 따라 서, 준비된 ATO sol-solution을 23-gauge needle이 장착 된 syringe속에 옮긴 후 feeding rate는 0.03 mL/h로 유 지하였다. 22 kV의 고전압 조건 아래에서 needle과 collector 사이에 10 cm를 유지하고 electrospray 실험을 준 비하였다. 또한 ATO의 증착 시간은 25분 동안 유지하 였다. 이렇게 glass기판 위에 증착된 ATO 입자는 150 ℃ 로 건조시킨 후 Ar(99.999 %)분위기에서 300 °C 온도 조 건에서 microwave 열처리를 수행하였다. 따라서 electrospray로 제조된 ATO 박막을 sample A로 언급될 것이 다. 또한 300 °C의 낮은 열처리 온도에서 우수한 ATO 박막을 제조하기 위해서 electrospray로 제조된 ATO 박 막 위에 추가적인 spin-coating 공정을 진행하였다. 추가 적인 spin-coating은 2000 rpm하에서 40초간 실시하였고 위에서 언급된 건조 및 microwave 열처리 과정을 동일 하게 진행하였다. 따라서 ATO박막의 최적화된 특성을 이 끌기 위해 추가적인 spin-coating 공정을 2, 4 및 6차례 반복하여 최종적인 ATO 박막을 제조하였으며 각각의 ATO 박막을 sample B, sample C, sample D로 언급할 것이다.

제조된 ATO 박막의 결정구조 및 화학적 특성을 분석 하기 위하여 X-선 회절분석(X-ray diffraction, XRD, Rigaku Rint 2500)과 X-선 광전자 주사법(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS, ESCALAB 250 equipped with an Al Kα X-ray source)을 이용하였다. 또한 박막에 표면 특성은 주사 전자 현미경(field-emission scanning electron microscopy, FESEM, Hitachi S-4700)과 원자 현미경 (Atomic force microscopy, AFM, Veeco diDimension<sup>TM</sup> 3100)으로 측정하였다. 가시광선 영역에서의 광학적 특성과 resistivity, carrier concentration, Hall mobility와 같은 전기적 특성은 자외선-가시선 흡광 광도법(UV-Vis Spectrophotometry, Scinco, S-3100)과 홀 효과 측정시스템(Hall effect measurement system, Ecopia, HMS-3000)을 사용하여 각각 비교 분석하였다.

# 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 저온 공정의 용액 기반 ATO 박막을 제조하 기 위한 electrospray, spin-coating, 및 microwave 열처 리를 이용한 실험 절차를 보여준다. 일반적인 electorpsray (Fig. 1(a))는 전구체를 포함한 용액, 실린지 펌프(syringe pump), 바늘(needle), 하부기판(collector) 및 DC 고전압 발생기(power supply)등 총 5개로 구성되어 있다. 또한 electrospray를 통한 입자 형성은 실린지 펌프를 통한 일 정한 용액 공급과 더불어 바늘 끝과 하부기판 사이에 놓 인 높은 전압 조건하에서 표면 장력에 의한 반구 형태 를 유지하던 용액이 불안정한 상태가 되면서 진행된다. 이렇게 제조된 electrosprayed ATO 박막의 전기적 특성 향상을 위하여 spin-coating법을 도입하였다(Fig. 1(b)). 이 렇게 제조된 ATO 박막 안에는 잔여 용매와 불순물이 함 께 존재하는데 이들의 제거를 위해서는 열처리 과정이 필 요하다. 본 연구에서 열처리 방법으로 microwave furnace 를 사용하였다(Fig. 1(c)). 이 방법은 microwave energy 의 전달에 의한 열처리로 기존 furnace보다 에너지 손실 이 작고 선택적이며 빠른 heating이 가능하다는 장점을 갖 고 있어 최근 다양하게 활용되고 있다. 16) 따라서 용액 기 반으로 제조된 ATO 박막을 microwave 열처리 방법을

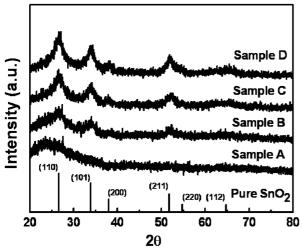


Fig. 2. XRD plots obtained from samples A, B, C, and D.

사용하여 300 ℃ 의 저온공정에서 수행하였다.

Fig. 2은 300 °C에서 microwave 열처리 후에 얻어진 sample A, sample B, sample C 및 sample D의 XRD 회절 데이타를 나타낸 것이다. Sample A의 23.4°에서 broad peak이 발견되며 이는 amorphous SiO2에 해당하는 glass peak을 의미한다. Sample A의 경우 ATO 박막의 얇은 두께로 인하여 상대적으로 낮은 XRD intensity가 관측되었고 이로 인해 SnO<sub>2</sub>에 해당하는 회절 peaks이 관 측 되지 않는다. 반면에 ATO sol laver들을 추가적으로 증착시킨 sample B, C 및 D의 경우 명확한 회절 peak 들이 나타난다. 일반적으로 SnO<sub>2</sub> phase의 주된 회절 peak들은 26.60°, 33.90°, 37.98°, 51.79°에서 관찰되며, 이는 tetragonal rutile 결정구조의 (110), (101), (200), (211) plane과 잘 일치한다(space group P4/mnm[136], JCPDS cards No. 21-1250). 하지만 제조된 sample들의 회절 peak들은 26.64°, 33.92°, 38.02°, 51.84°에서 관찰 되며, 약간의 high angle shift가 일어남을 알 수 있다. 이는 Sb<sup>5+</sup>이온이 SnO<sub>2</sub> 격자 안으로 doping되는 효과이 며 Sb<sup>5+</sup>의 이온반경(0.62 Å)이 Sn<sup>4+</sup>의 이온반경(0.69 Å)보 다 작기 때문에 발생되며 이것은 Bragg 법칙으로 설명 할 수 있다. 17,18) 또한 peak들의 상대강도가 spin-coating 층의 수가 증가할수록 점차적으로 증가하는데 이는 박 막의 두께 증가로 인한 결정성 향상에 기인한다. 그러 므로 ATO 박막의 두께는 전기적 및 광학적 특성을 좌 우하는 중요한 요인 중 하나가 될 것이다.

저온 공정을 이용한 용액 기반 ATO 박막의 화학적 결 합상태를 알아 보기 위해 sample B에 대한 XPS 분석 을 진행하였다. Fig. 3은 sample B에 대한 (a) Sn 3d와 (b) Sb 3d core level의 XPS spectra를 보여준다. XPS curve의 모든 binding energy는 C 1s의 284.5 eV를 기 준으로 보정하였다. Fig. 3(a)에서 보여지듯이 Sn  $3d_{5/2}$ 와 Sn 3d<sub>3/2</sub>의 XPS peaks은 각각 ~486.65 eV와 ~495.11 eV에서 관찰되며 이는 SnO<sub>2</sub> phase의 Sn<sup>4+</sup>를 의미하고 따라서 성공적인 SnO<sub>2</sub> phase의 합성을 나타낸다. 19) Fig. 3(b)에서의 Sb 3d<sub>5/2</sub>와 Sb 3d<sub>3/2</sub> peak들은 각각 ~530.53 eV와 ~539.91 eV 에서 관찰되는데 이는 Sb의 화학적 산 화상태가 Sb<sup>5+</sup>임을 의미하고 따라서 Sn<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 성공적인 합 성을 나타낸다. 또한 Sb 3d<sub>5/2</sub>의 ~531.99 eV에서 미세한 peak이 관찰되는데 이는 ATO박막에 적용되는 저온의 열 처리온도 때문에 잔존하는 Sb-OH의 화학적 상태를 보 여준다. 이러한 결과들을 바탕으로 sample B는 SnO<sub>2</sub> 와 Sb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> phase로 구성되었음을 나타낸다. 이것은 성공적 으로 용액 기반 저온 공정을 이용하여 ATO 박막이 성 공적으로 제조되었음을 나타낸다.

Fig. 4(a)-(d)은 저온공정을 이용한 용액 기반 ATO 박막의 top-view FESEM 이미지를 나타낸다. Sample A은

148 구본율 · 안효진

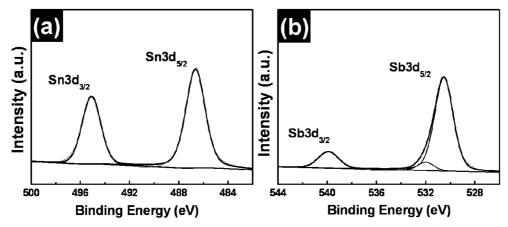


Fig. 3. XPS core-level spectra of Sn 3d (a) and Sb 3d (b) photoelectrons obtained from sample B.

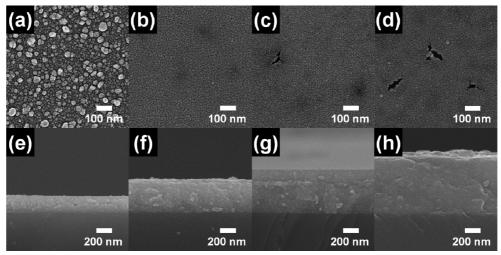


Fig. 4. Top-view ((a)-(d)) and cross-view FESEM images ((e)-(h)) of samples A, B, C, and D.

electrospray로 증착된 ATO 박막으로 불균일하고 porous 한 표면상태를 보여준다. 이러한 porous한 표면상태는 TCO 박막을 이루고 있는 inter-grain boundary 사이에서 scattering 반응이 증가하기 때문에 전기적 특성에 매우 큰 악영향을 준다.<sup>20)</sup> 따라서 ATO 박막의 균일한 표면 을 얻기 위하여 우리는 본 연구에서 electrosprayed ATO 박막 위에 ATO sol-solution을 이용하여 spin-coating법 을 도입하였다. 그 결과 Fig. 4(b)에서 보여지는 것처럼 ATO sol-solution을 이용하여 2층을 쌓은 ATO 박막의 표면은 매우 균일하고 치밀한 상태이다. 또한 ATO solsolution의 optimum 층수를 확인하기 위하여 4층(Fig. 4(c)) 및 6층(Fig. 4(d))을 수행하였다. 이때 Fig. 4(c) 및 Fig. 4(d)에서 보여지는 것처럼 ATO 층수가 증가할수록 ATO 박막 표면 위에 crack이 형성을 확인 하였으며 그 크기와 분포가 ATO 층수가 증가할수록 점차적으로 증 가하는 현상이 보여진다. 이러한 crack 형성 원인은 아 마도 과도한 박막 두께의 증가와 더불어 microwave로 인 한 반복적인 열처리 과정 때문이며 결과적으로 TCO의

이동도 감소의 원인이 된다. Fig. 4(e)-(h)은 ATO 박막의 cross-sectional FESEM 이미지를 나타낸다. 샘플들의 측정된 두께는 sample A의 경우 약 215 nm, sample B는 약 416 nm, sample C는 약 579 nm, sample D는약 786 nm으로 spin-coating에 의해 형성된 ATO 층이증가 함으로써 박막의 두께는 점차적으로 증가한다. 게다가 ATO 박막의 roughness을 확인하기 위하여 우리는 AFM 실험을 수행하였다. 본 논문에서 데이터는 보여주지 않았지만 샘플들의 roughness는 sample A의 경우 약7.97 nm, sample B의 경우 약2.47 nm, sample C의 경우약3.44 nm, sample D의 경우약7.97 nm로 관찰되었다. 따라서 sample B의 경우가장 우수한 roughness을 나타낸다. 이것은 TCO로 적용시 낮은 roughness을 나타낸다. 이것은 TCO로 적용시 낮은 roughness (Rms) 특성으로 인하여 매우 우수한 전기적 특성을 얻을수 있다. 21)

Fig. 5(a)은 carrier concentration, Hall mobility 및 resistivity를 포함한 sample A, sample B, sample C 및 sample D의 전기적 특성을 나타낸다. Sample A, B, C

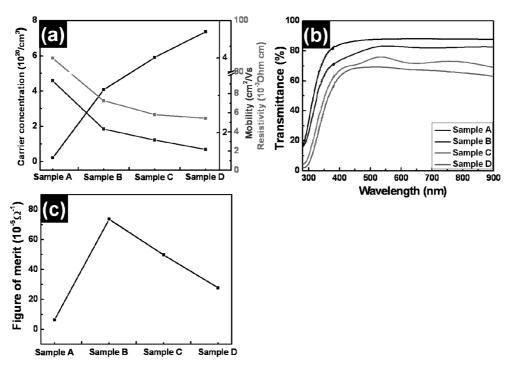


Fig. 5. Electrical properties for carrier concentration, Hall mobility, and resistivity (a), optical transmittances (b), and figure of merits (c) obtained from sample A, B, C, and D.

및 D의 carrier concentration은  $2.15 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ,  $4.09 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  $10^{20}\,\mathrm{cm}^{-3}$ ,  $5.91\times10^{20}\,\mathrm{cm}^{-3}$ ,  $7.37\times10^{20}\,\mathrm{cm}^{-3}$ 로 확인되었 다. 즉 다시 말해 ATO sol-solution층이 증가함에 따라 carrier concentration은 점차적으로 증가한다. 이러한 증 가는 XRD결과에서 확인되는 박막두께의 증가로 인한 결 정성 향상 때문이다. Hall mobility의 경우 sample A은  $3.39 \text{ cm}^2/(\text{V·s})$ , sample B \circ 2.10 cm<sup>2</sup>/(V·s), sample C \circ 1.81 cm²/(V·s), sample D은 1.56 cm²/(V·s)로 관측되었다. ATO sol-solution 증가에 따른 Hall mobility의 감소는 위에서 언급한 carrier concentration의 증가와 관련이 있 다. 즉, 과도한 carrier concentration은 carrier사이에 scattering을 증가시키기 때문에 이동도의 감소가 발생하게 된 다. 게다가 SEM에서 확인된 crack형성 또한 이동도의 감 소를 야기시켜 전기적 특성에 직접적인 영향을 끼친다 고 판단된다. 따라서 박막의 resistivity 계산은 아래 식 으로 얻을 수 있으며, 여기서 N은 carrier concentration, μ는 Hall mobility, e는 전자 전하량( $e = 1.602 \times 10^{-19}$ C) 을 의미한다.<sup>22)</sup>

$$\rho = 1/(Ne\mu)$$

그러므로 sample들의 resistivity는 sample A의 경우  $8.53 \times 10^{-2} \Omega$ ·cm, sample B의 경우  $7.25 \times 10^{-3} \Omega$ ·cm, sample C의 경우  $5.81 \times 10^{-3} \Omega$ ·cm, sample D의 경우  $5.42 \times 10^{-3} \Omega$ ·cm로 각각 계산되었다. 결과적으로 ATO

sol-solution층이 증가함으로써 비저항의 감소가 관찰되었다. 더욱이 electrospray법으로만 이용하여 제조된 sample A의 경우 가장 높은 resistivity을 보였다. 또한 sample D의 가장 낮은 resistivity은 박막 두께의 증가에 따른 치밀화 및 결정성 향상에 따른 carrier concentration의 증가에 기인한 것으로 보인다. 23) Fig. 5(b)은 sample A, sample B, sample C 및 sample D로 부터 얻어진 모든 ATO 박막의 투과도 특성을 보여준다. sample A의 경우 550 nm에서 투과도가 87.8 %이며 이는 매우 우수한 광학적 특성으로 다른 sample들과 비교해서 박막 두께가 얇기 때문이다. 또한 sample B, sample C 및 sample D의 투과도는 83.1 %, 75.5 % 및 68.9 %로 관측되었다. 다시말해서 ATO층의 두께 증가와 표면 roughness 증가가가시광선의 scattering을 증가시켜 투과도 감소를 일으킨

**Table 1.** List of electrical properties for solution-based ATO thin films obtained from various synthetic methods.

Synthetic methods	Resistivity $(\Omega \cdot cm)$	Annealing temperature (°C)	References
Sol-gel dip coating	$\sim 15 \times 10^{-3}$	550	[9]
Sol-gel spin-coating	$\sim \! 37 \times 10^{-3}$	550	[10]
Spray pyrolysis	$\sim 1.5 \times 10^{-3}$	550	[11]
Inkjet-printing	${\sim}61\times10^{-3}$	700	[12]

150 구본율 · 안효진

Table 2. Summary of ele	ectrical and optical propertie	es for sample A, sample B,	sample C, and sample D.
-------------------------	--------------------------------	----------------------------	-------------------------

Samples	Sample A	Sample B	Sample C	Sample D
Carrier concentration (cm <sup>-3</sup> )	$2.15 \times 10^{19}$	$4.09 \times 10^{20}$	$5.91 \times 10^{20}$	$7.37 \times 10^{20}$
Hall mobility (cm <sup>2</sup> /(V·s))	3.39	2.10	1.81	1.56
Resistivity $(\Omega \cdot cm)$	$8.53 \times 10^{-2}$	$7.25 \times 10^{-3}$	$5.81 \times 10^{-3}$	$5.42 \times 10^{-3}$
Transmittance (%)	87.8	83.1	75.5	68.9

다. 게다가 지금까지 용액기반 ATO 박막 제조는 dip coating, spin-coating, spray pyrolysis, inkjet-printing등의 제조 방법으로 이루어지고 있다. Table 1에서 언급한 것처럼 용액 기반 ATO 박막의 우수한 특성을 얻기 위해서는 고온의 열처리 온도가 요구된다. 그러나 본 연구에서는 300 ℃의 저온 공정 조건임에도 불구하고 현재 보고된 350 ℃에서 열처리된 DC sputtering 공정으로 제조된 ATO 박막(3.0 × 10⁻³ Ω·cm)과 유사한 전기적 특성을 보여준다.²⁴) 이렇게 용액 기반 저온공정을 이용한 ATO 박막의 전기적 및 광학적 특성을 Table 2에 간략하게 정리하였다. 이 결과를 기반으로 제조된 ATO 박막의 성능 비교를 할 수 있는 기준인 Figure of merit (FOM)을 다음과 같은 식으로 계산할 수 있으며 그 결과는 Fig. 5(c)에서 나타내었다.²⁵)

 $FOM = T^{10}/R_s$ 

여기서  $R_s$ 는 ATO 박막의 면 저항이고, T는 550 nm 파장에서의 투과도 결과이다. 계산된 FOM는 sample A 의 경우  $6.3 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ , sample B의 경우  $73.7 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ , sample C의 경우  $49.7 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ , sample D의 경우  $27.7 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$ 로 나타나며 sample B에서 가장 높은 FOM 특성을 나타내었다. 이러한 결과를 통하여 sample B의 경우 우수한 전기적 및 광학적 특성을 동시에 만족함을 알 수 있다. 그러므로 저온 공정 조건하에서의 용액 기반 ATO 박막의 제조는 공정의 효율성뿐 아니라 flexible devices 같은 TCO 응용 분야에 적용이 가능할 것으로 판단된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 electrospray와 spin-coating법을 이용하여 300 °C의 저온 공정온도 조건하에서 ATO박막을 제조하였다. 제조된 ATO박막의 구조적, 화학적, 형태적, 전기적 및 광학적 특성을 조사하기 위해 XRD, XPS, FESEM, AFM, Hall effect measurement system 및 UV-Vis Spectrophotometry를 수행하였다. 단순히 electrospray로 제조된 ATO박막은 낮은 결정성과 rough한 표면특성을 보이는 반면에, 추가적인 spin-coating법을 이용하여

ATO sol-solution을 도입하여 ATO 층을 증착한 경우 박 막의 입자들 빈틈을 채워주어 ATO박막의 치밀도 및 균 일성이 증가하는 결과를 보여주었다. 이는 결과적으로 향상된 carrier concentration를 야기 시키고 박막의 전기적 특성을 증가시키는 결과를 얻었다. 따라서 sample B의 경우 우수한 전기적 특성 $(7.25 \times 10^{-3}\,\Omega\cdot\mathrm{cm})$ , 높은 투과율  $(83.1\,\%)$  및 가장 우수한 FOM특성 $(73.7 \times 10^{-5}\,\Omega^{-1})$ 을 나타냈다.

# 감사의 글

This study was supported by the Research Program funded by the Seoul National University of Science and Technology.

#### References

- 1. H. K. Kim, S. G. Lee and K. S. Yun, Sens. Actuators, A, **165**, 2 (2011).
- 2. I. G. Lee and B. H. Noh, J. Kor. Powd. Met. Inst., **15**, 450 (2008).
- 3. C. J. Brabec, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **83**, 273 (2004).
- 4. M. Eritt, C. May, K. Leo, M. Toerker and C. Radehaus, Thin Solid Films, **518**, 3042 (2010).
- J. Meyer, P. Görrn, S. Hamwi, H.-H. Johannes, T. Riedl and W. Kowalsky, Appl. Phys. Lett., 93, 073308 (2008).
- 6. E. K. Shokr, Semicond. Sci. Technol., 15, 247 (2000).
- 7. J. Kane, H. P. Schweizer and W. Kern, ECS J. Solid State Sci. Technol., 123, 270 (1976).
- 8. X. Hao, J. Ma, D. Zhang, X. Xu, Y. Yang, H. Ma and S. Ai, Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process., **75**, 397 (2002).
- 9. R. M. Pasquarelli, D. S. Ginley and R. O'Hayre, Chem. Soc. Rev., **40**, 5406 (2011).
- D. Ganz, G. Gasparro, J. Otto, A. Reich, N. J. Arfsten and M. A. Aegerter, J. Mater. Sci. Lett., 16, 1233 (1997).
- 11. D. Burgard, C. Goebbert and R. Nass, J. Sol-Gel Sci. Technol., **13**, 789 (1998).
- 12. M. A. Aegerter, A. Reich, D. Ganz, G. Gasparro, J. Pütz and T. Krajewski, J. Non-Cryst. Solids, **218**, 123 (1997).
- 13. J. W. Lim, B. Y Jeong, H. G. Yoon, S. N. Lee and J. H. Kim, J. Nanosci. Nanotechnol., **12**, 1675 (2012).
- 14. D. Zhang, L. Tao, Z. B Deng, J. B Zhang and L. Y. Chen,

- Mater. Chem. Phys., 100, 275 (2006).
- 15. S. J. Jeon, J. J. Lee, J. T. Kim and S. M. Koo, J. Ceram. Process. Res., 7, 321 (2006).
- 16. K. E. Haque, Int. J. Miner. Process., 57, 1 (1999).
- 17. J. Kong, H. M Deng, P. X. Yang and J. H. Chu, Mater. Chem. Phys., **114**, 854 (2009).
- T. Krishnakumar, R. Jayaprakash, N. Pinna, A. R. Phani, M. Passacantando and S. Santucci, J. Phys. Chem. Solids, 70, 993 (2009).
- 19. P. S. Lee, Y. H. Lin, Y. S. Chang, J. M. Wu and H. C. Shih, Thin Solid Films, **519**, 1749 (2010).
- 20. H. R. An, C. Y. Kim, S. T. Oh, and H. J. Ahn, Ceram.

- Int., 40, 385 (2014).
- 21. S. U. Lee, W. S. Choi and B. Y Hong, Phys. Scr., **T129**, 312 (2007).
- 22. S. Calnan and A. N. Tiwari, Thin Solid Films, **518**, 1839 (2010).
- 23. K. Daoudi, C. S. Sandu, V. S. Teodorescu, C. Ghica, B. Canut, M. G. Blanchin, J. A. Roger, M. Oueslati and B. Bessais, Cryst. Eng., **5**, 187 (2002).
- 24. J. Montero, J. Herrero and C. Guillén, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **94**, 612 (2010).
- J Liu, A. W. Hains, J. D. Servaites M. A. Ratner and T. J. Marks, Chem. Mater, 21, 5258 (2009).