

유기물과 유무기 혼합 폴리머 게이트 절연체를 사용한 유기 박막 트랜지스터의 특성

Characteristics of Organic Thin Film Transistors with Organic and Organic-inorganic Hybrid Polymer Gate Dielectric

배인섭¹, 임하영², 조수현², 문송희², 최원석^{3,a}
(In-Seob Bae¹, Ha-Young Lim², Su-Heon Cho², Song-Hee Moon², and Won Seok Choi^{3,a})

Abstract

In this study, we have been synthesized the dielectric layer using pure organic and organic-inorganic hybrid precursor on flexible substrate for improving of the organic thin film transistors (OTFTs) and, design and fabrication of organic thin-film transistors (OTFTs) using small-molecule organic semiconductors with pentacene as the active layer with record device performance. In this work OTFT test structures fabricated on polymerized substrates were utilized to provide a convenient substrate, gate contact, and gate insulator for the processing and characterization of organic materials and their transistors. By an adhesion development between gate metal and PI substrate, a PI film was treated using O₂ and N₂ gas. The best peel strength of PI film is 109.07 gf/mm. Also, we have studied the electric characteristics of pentacene field-effect transistors with the polymer gate-dielectrics such as cyclohexane and hybrid (cyclohexane+TEOS). The transistors with cyclohexane gate-dielectric has higher field-effect mobility, $\mu_{FET}=0.84 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, and smaller threshold voltage, $V_T=-6.8 \text{ V}$, compared with the transistor with hybrid gate-dielectric.

Key Words : OTFT, Plasma polymerization, Polymer gate dielectric, Peel test

1. 서론

유기 박막 트랜지스터 (Organic Thin Film Transistors; OTFTs)는 광범위한 응용이 가능한 소자로 최근 많은 연구가 진행되어지고 있다[1,2]. 전자기기와 반도체 산업에 적용하기 위한 고분자 유기재료들의 이용은 그동안 과학과 기술 분야에서 많은 관심을 받았다[3]. 유기재료들은 합성과 공정이 쉬운 장점으로 다양한 전극과 광소자에 적

용이 가능하다[4]. 또한, OTFT는 그들의 경량함과 유연성 그리고 간단한 공정 등의 장점을 가지고 있다[5]. 특히, 플라스틱 기판 위에 저온으로 유기 재료들을 공정하는 기술은 스마트카드와 플렉시블 디스플레이 분야에 적용이 가능하다[5,6]. OTFT는 최근 몇 년간 급속도로 발전하여 그것의 이동도 값은 비정질 실리콘 TFT 값과 유사한 정도에 이르렀다[5-11]. 저비용과 대면적 전극적용을 위하여 플라스틱 위에 만들어지는 모든 유기 트랜지스터는 흥미롭다. 하지만, SiO₂ 등의 무기물을 유전체를 사용한 유기 트랜지스터는 유연한 기판에 밴딩 시 스트레스에 의한 결함형성 등의 문제점이 발생한다. 그러므로 우리는 cyclohexane과 혼합재료 (cyclohexane+TEOS)를 게이트 절연체 층을 활용하여 제작된 OTFT의 표면층과 전기적 특성을 연구하였다. 또한 기판의 접착력 향상을 위해 대기압

1. 성균관대학교 화학과
2. 부천상원고등학교
3. 한밭대학교 전기공학과
(대전시 유성구 덕명동 산16-1)
a. Corresponding Author : wschoi@hanbat.ac.kr
접수일자 : 2009. 8. 19
1차 심사 : 2009. 9. 2
심사완료 : 2009. 11. 9

플라즈마 장비를 사용한 표면처리를 통해 변화된 각 기관들의 표면 에너지 및 표면 특성 변화를 관찰하였다.

2. 실험

OTFT의 Cu 게이트는 DC 마그네트론 스퍼터링 장비를 사용하여 증착하였으며, Cu와 폴리이미드 (PI) 기관 사이의 접착력을 향상시키기 위해 산소 및 질소 gas를 사용하여 500 W까지 플라즈마 파워 변화를 주며 대기압 플라즈마 장비를 이용하여 표면처리를 하였다. 기관표면의 거칠기는 AFM을 사용하여 측정하였으며, 접착각을 측정하여 각 조건에서의 표면에너지를 예측하였다.

유기물 cyclohexane과 혼합재료 (cyclohexane+TEOS) 층은 상온에서 20 W의 RF 파워로 PECVD 장비를 이용하여 증착하였다. 70 nm의 반도체 박막 층은 펜타센 (pentacene) 전구체를 사용하여 열 분해방법으로 80°C에서 저온유전체 위에 코팅하였다. Au 소스와 드레인 전극은 반도체 박막위에 80 nm의 두께로 증착되었고, 각각의 넓이와 길이는 800, 400 μm 로 형성하였다. 제작된 OTFT의 전기적 특성은 대기압과 실온에서 HP 4145B semiconductor parameter analyzer를 사용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

PI 필름은 산소와 질소 분위기에서 300~500 W의 플라즈마 파워를 사용하는 대기압 플라즈마 장비를 사용하여 처리하였다. 그림 1은 산소 및 질소 분위기에서 RF 파워에 따른 RMS 거칠기와 접착각의 변화이다. 질소 플라즈마 처리에 의한 PI의 표면 거칠기는 산소 보다 높게 측정되었으며, 이는 질소 전자의 속도가 산소 전자보다 빠르기 때문이며[12], 이러한 질소 플라즈마의 높은 속도는 산소 플라즈마보다 강한 충격을 기관 표면에 인가하여 표면을 거칠게 만든다. 접착각 측정법은 고체 표면의 표면 에너지를 측정하는 일반적인 방법으로 알려져 있으며[13], 변형된 표면의 민감한 변화를 검출할 수 있는 측정방법이다. RF 파워가 증가할수록 접착각은 증가하고 표면에너지는 낮아지는 것을 확인할 수 있다. 접착각 측정법은 하이드록실이나 아민과 같은 작용기에 의해서 PI 표면이 변화된 것을 알려주는 강력한 방법이다. 낮은 접착각은 산소

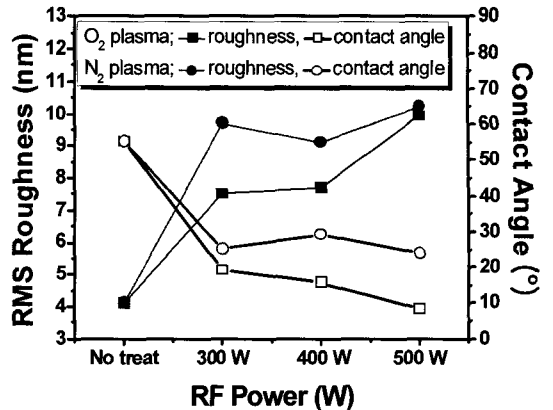


그림 1. 산소와 질소 플라즈마 처리에 따른 PI 필름의 RMS 거칠기.

Fig. 1. RMS roughness and contact angle of O₂ and N₂ plasma treated PI films.

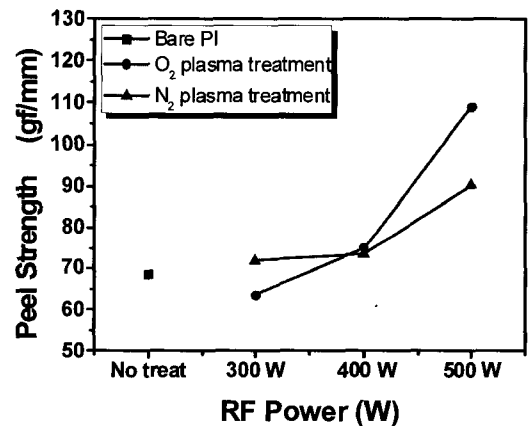
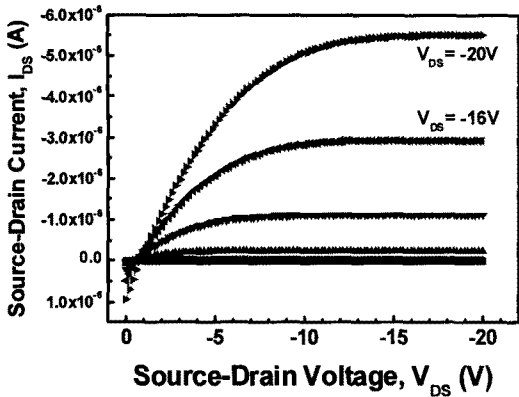


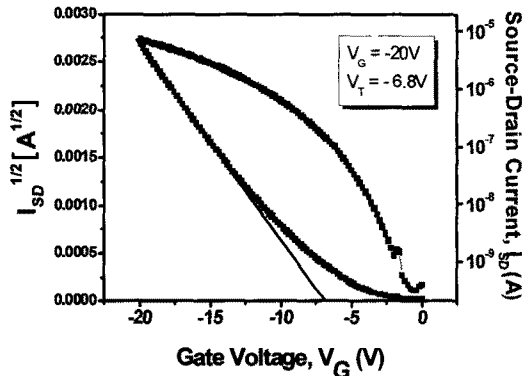
그림 2. 산소와 질소 플라즈마 처리와 RF 파워에 따른 peel strength.

Fig. 2. The peel strength by O₂ and N₂ plasma treatment with increasing RF power.

플라즈마 처리에 의해서 나타났다. 이것은 -OH 작용기가 산소 플라즈마에 의해서 쉽게 형성되기 때문이며[14], 이는 친수성 표면을 형성한다. 또한 질소 플라즈마 처리된 PI 필름도 낮은 접착각을 가지는데 이는 표면 거칠기에 의해서 야기된다. 산소 플라즈마 처리는 질소 플라즈마 처리에 비하여 더 강한 친수성 효과를 보인다. 이것은 산소 플라즈마 처리가 강한 표면 에너지를 가지기 때문이다[15]. 그림 2는 게이트와 PI 기관 사이의 peel strength



(a)



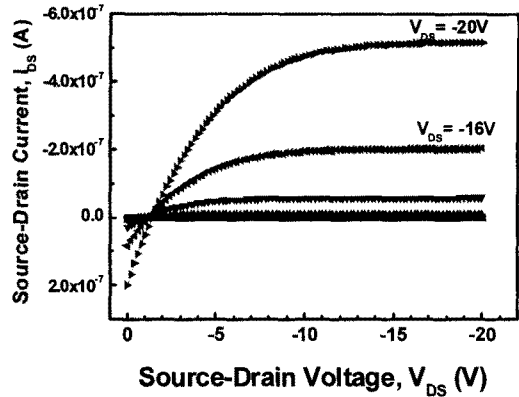
(b)

그림 3. 유기 폴리머 게이트 절연체 (cyclohexane 만 사용)를 사용한 OTFTs의 전류-전압 특성, (a) 게이트 전압에 따른 I_D 대 V_D , (b) -20 V로 고정된 드레인 전압에서 V_G 에 따른 I_D 와 $I_D^{1/2}$.

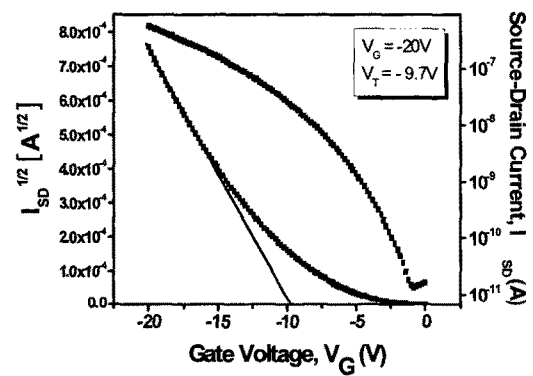
Fig. 3. I-V characteristics of OTFTs with organic polymer gate dielectric (only cyclohexane), (a) I_D vs. V_D for series of gate voltage, (b) I_D and $I_D^{1/2}$ vs. V_G for a fixed drain source voltage of -20 V.

를 보여준다. AFM, 접착각, peel strength에 따르면 산소가 질소에 비하여 강한 극성을 가지고 있기 때문에 산소 플라즈마 처리가 질소 처리보다 더 좋은 효과를 가지는 것으로 보인다. 또한 산소 플라즈마 처리는 높은 표면 에너지를 가진다[16-18].

그림 3(a)는 OTFTs에 사용되는 cyclohexane 단일 게이트 유전체 필름의 (200 nm) 전류-전압 ($I_D^{1/2}$ - V_G) 특성이다. V_G 는 +40에서 -40 V까지 변



(a)



(b)

그림 4. 유기기 혼합 폴리머 게이트 절연체 (cyclohexane+TEOS)를 사용한 OTFTs의 전류-전압특성, (a) 게이트 전압에 따른 I_D 대 V_D , (b) -20 V로 고정된 드레인 전압에서 V_G 에 따른 I_D 과 $I_D^{1/2}$.

Fig. 4. I-V characteristics of OTFTs with organic-inorganic hybrid polymer dielectric (cyclohexane+TEOS), (a) I_D vs. V_D for series of gate voltage, (b) I_D and $I_D^{1/2}$ vs. V_G for a fixed drain source voltage of -20 V.

화를 주었고, -20 V로 소스 소모전압을 고정하였을 때 I_D 의 제곱근 대 게이트전류(V_G)에 관한 곡선은 그림 3(b)에 정리하였다. $I_D^{1/2}$ - V_G 곡선은 -20 V의 일정한 소스 소모전압 일 때 측정되었고 이동도도 결정되었다[18]. 따라서 이동도는 $0.84 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 로 측정되었고, 문턱 전압은 -6.8 V로 측정되었다. On-Off 상태의 전류는 $\sim 10^{-6}$ 과 $\sim 10^{-10}$ A이며, On-Off 전류비율은 대략 $10^4 \sim 10^5$ 이다.

혼합재료 (cyclohexane+TEOS) 박막 (200 nm 두께)의 전기적인 특성은 그림 4에 나타내었다. OTFTs에 사용되는 cyclohexane의 단일 게이트 유전체 필름의 캐리어 이동도와 문턱 전압은 동일한 방법으로 얻어졌으며 각각 $0.29 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, -9.7 V 이다. $10^4 \sim 10^5$ 의 On-Off 전류 비율로써 산출된 On 상태와 Off 상태의 전류는 얻어진 On-Off 전류는 각각 $\sim 10^{-7}$ and $\sim 10^{-11} \text{ A}$ 이다. 유기 게이트 유전체와 혼합 게이트 유전체를 비교할 경우, 유기 게이트 유전체를 이용한 소자는 좋은 포화특성과 적은 누설전류를 보인다. cyclohexane 위에 펜타센을 올린 경우 더 높은 소모전류는 더 높은 전계효과 이동도를 의미한다. 그림 3(b)와 4(b)에서, 큰 음성적인 문턱전류는 그래인 경계에서 캐리어 트래핑에 기인하고 펜타센과 혼합체의 계면에서 발현됨을 의미한다[4]. OTFT 소자의 특성에 따르면, 대부분의 경우 유기 게이트 유전체가 혼합 게이트 유전체보다 좋은 소자특성을 보인다.

4. 결론

본 연구에서는 상압 플라즈마 장비를 사용하여 유연한 기판 표면을 산소와 질소가스 표면처리를 수행하였다. 각각의 시료들의 접촉각은 플라즈마 처리를 하지 않은 시료보다 더 작은 각을 보였으며, 표면 거칠기는 더 높았다. 특히 산소 플라즈마를 처리 하였을 때 질소 플라즈마를 처리한 것 보다 접촉각이 더 낮았다. 낮은 접촉각은 높은 표면에너지를 의미하기 때문에 산소 플라즈마로 처리하였을 때 표면이 벗겨지는 정도가 질소로 처리하였을 때 보다 더 높았다. 이 결과를 바탕으로 500 W RF 파워로 산소 플라즈마 처리를 한 PI 기판을 제작하였다.

마지막으로 사이클로 헥산과 혼합게이트 유전체로 펜타센 OTFT의 전기적 성격에 대해서 연구하였다. Cyclohexane과 트랜지스터는 혼합재료 (cyclohexane+TEOS) 트랜지스터와 비교했을 때 매우 높은 전계효과 이동도 ($\mu\text{FET}=0.29 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ and $V_T=-9.7 \text{ V}$)를 보였고, 상온에서 낮은 문턱 전압 ($\mu\text{FET}=0.84 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, $V_T=-6.8 \text{ V}$)을 보였다. 이동도는 특히 불규칙적으로 배열된 유기 반도체에서 전기장의 제곱근의 지수에 의존하는 것을 알 수 있다. cyclohexane 게이트 유전체와 트랜지스터는 전기장에 의한 의존도가 낮으며 이것은 혼합체와 비교 시 적은 trap 농도임을 알 수 있다. 게다가, PI 기판과 게이트 금속의 응집이 산소 기체를

이용한 RF 세기가 증가함에 따라 증가한다. 이 결과는 유기 유전체의 이동도에서 전기용량이 중요하다는 것을 의미한다.

참고 문헌

- [1] 박영돈, 장윤석, 최현호, 조길원, "유기박막 트랜지스터의 연구현황과 전망", 공업화학전망, 11권, 5호, p. 30, 2008.
- [2] 박정환, 한교용, "P3HT/POSS 합성 활성층을 이용한 OTFT 소자의 대기안정성 향상", 전기전자재료학회논문지, 22권, 2호, p. 107, 2009.
- [3] R. Farchioni and G. Grosso, "Organic Electronic Materials: Conjugated Polymers and Low Molecular Weight Organic Solids", Springer, Berlin, 2001.
- [4] R. H. Friend, R. W. Gymer, A. B. Holmes, J. H. Burroughes, R. N. Marks, C. Taliani, D. D. C. Bradley, D. A. Dos Santos, J. L. Bredas, M. Logdlund, and W. R. Salaneck, "Electroluminescence in conjugated polymers", Nature, Vol. 397, p. 121, 1999.
- [5] J. A. Rogers and Z. Bao, "Printed plastic electronics and paperlike Displays", J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem., Vol. 40, p. 3327, 2002.
- [6] C. D. Dimitrakopoulos and P. R. L. Malenfant, "Organic thin film transistors for large area electronics", Adv. Mater., Vol. 14, p. 99, 2002.
- [7] C. D. Dimitrakopoulos, S. Purushothaman, J. Kymissis, A. Callegari, and J. M. Shaw, "Low-voltage organic transistors on plastic comprising high-dielectric constant gate insulators", Science, Vol. 283, p. 822, 1999.
- [8] G. H. Gelinck, T. C. T. Geuns, and D. M. de Leeuw, "High-performance all-polymer intergrated circuits", Appl. Phys. Lett., Vol. 77, p. 1487, 2000.
- [9] H. Sirringhaus, T. Kawase, R. H. Friend, T. Shimoda, M. Inbasekaran, W. Wu, and E. P. Woo, "High-resolution inkjet printing of all-polymer transistor circuits", Science, Vol. 290, p. 2123, 2000.
- [10] H. E. A. Huitema, G. H. Gelinck, J. B. P. H. van der Putten, K. E. Kuijk, K. M. Hart,

- E. Cantatore, and D. M. de Leeuw, "Active-matrix displays driven by solution-processed polymeric transistors", *Adv. Mater.*, Vol. 14, p. 1201, 2002.
- [11] C. D. Sheraw, L. Zhou, J. R. Huang, D. J. Gundlach, T. N. Jackson, M. G. Kane, I. G. Hill, M. S. Hammond, J. Campi, B. K. Greening, J. Francl, and J. West, "Organic thin-film transistor-driven polymer-dispersed liquid crystal displays on flexible polymeric substrates", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 80, p. 1088, 2002.
- [12] G. Dalba, P. Fornasini, R. Grisenti, G. Ranieri and A. Zecca, "Absolute total cross section measurements for intermediate energy electron scattering II. N₂, O₂ and NO", *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, Vol. 13, p. 4695, 1980.
- [13] D. Y. Kwok, T. Gietzelt, K. Gruntke, H.-J. Jacobasch, and A. W. Neumann, "Contact angle measurements and contact angle interpretation. 1. contact angle measurements by axisymmetric drop shape analysis and a goniometer sessile drop technique", *Langmuir*, Vol. 13, p. 2880, 1997.
- [14] J. R. Hall, Carolyn A. L. Westerdahl, A. T. Devine, and M. J. Bodnar, "Effect of activated gas plasma treatment time on adhesive bondability of polymers", *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 13, p. 2085, 1969.
- [15] N. Inagaki, S. Tasaka, and K. Hibi, "Surface modification of Kapton film by plasma treatments", *J. Polym. Sci.: Part A: Polym. Chem.*, Vol. 30, p. 1425, 1992.
- [16] K. Kendall, "Thin-film peeling-the elastic term", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 8, p. 1449, 1975.
- [17] 최원석, 박문기, 홍병유, "열처리온도에 따른 다이아몬드상 카본박막의 구조적 특성변화", *전기전자재료학회논문지*, 19권, 8호, p. 701, 2006.
- [18] H. K. Christenson, "Adhesion and surface energy of mica in air and water", *J. Phys. Chem.*, Vol. 97, p. 12034, 1993.
- [19] Y. G. Seol, K. G. Lee, N.-E. Lee, S. Lee, and J. Ahn, "Electrical characteristics of poly(3-hexylthiophene) organic thin film transistor with electroplated metal gate electrodes on polyimide", *Thin Solid Films*, Vol. 515, p. 5065, 2007.