

용액공정을 이용한 열처리된 산화아연 박막의 투명한 박막 트랜지스터 구현을 위한 전사방법 개발

권순열^{*}·정동건^{*}·최영찬^{*}·이재용^{*}·공성호^{**†}

^{**†} 경북대학교 IT대학 전자공학부

Development of Transfer Method for Transparent Thin Film Transistor of Heat-treated Zinc Oxide Thin Film by Solution Process

Soon Yeol Kwon^{*}, Dong Geon Jung^{*}, Young Chan Choi^{*}, Jae Yong Lee^{*} and Seong Ho Kong^{**†}

^{**†} Kyungpook National University, School of Electronics Engineering

ABSTRACT

Recently, Thin-film transistors (TFTs) are fundamental building blocks for state-of-the-art microelectronics, such as flat-panel displays and system-on-glass. Zinc oxide thin films have the advantage that they can grow at low temperature and can obtain high charge movility. Also the zinc oxide thin film can be used to control the resistance according to the oxygen content, so it is very easy to obtain the desired physical properties. In this paper, we fabricated a zinc oxide thin film on a polished copper substrate through a solution process, then improved the crystallinity through a geat treatment porcess, and studied to transfer it on a flexible substrate after the heat treatment was completed.

Key Words : ZnO Thin Film Transistors, Flexible Thin Film, Transparent Thin Film Transistor, ZnO Heat Treatment

1. 서 론

박막 트랜지스터(TFTs)는 평면 패널 디스플레이 및 시스템 온 유리(system-on-glass)와 같은 최첨단 마이크로 전자 기기의 기본 구성 요소이다. 또한 저온 박막 트랜지스터를 제작하면 유연한 대면적 전자 장치를 개발할 수 있다 [1-4]. 이러한 장치는 크기가 크고 경제적인 고해상도 디스플레이 및 웨어러블 기기는 물론 더 나아가 종이 디스플레이에 필요한 유연하고 가벼우며 충격에 강하고 잠재적으로 경제적 특성을 가지고 있다[4]. 또한 투명 회로 기술을 응용하면 자동차의 앞 유리에 디스플레이 기능을 적용할 수 있는 장점이 있다[5-8].

최근 이러한 이유로 유연하고 투명한 기판의 산화아연 박막 트랜지스터는 경량화, 저비용, 고효율을 위해 많은

주목을 받고 있다[9]. 용액공정을 이용한 산화아연박막 낮은 온도에서 제작이 가능하며 높은 전하 이동도를 가지는 장점을 가지고 있다. 산화아연박막은 산소함량에 따라 저항을 제어할 수 있는 장점이 있기 때문에 원하는 물성을 얻기에 용이하며 투명하고 유연한 박막 트랜지스터에 응용할 수 있다는 장점을 가진다[10,11].

용액공정을 이용한 산화아연 박막 트랜지스터는 저비용에 대면적의 제작이 용이하며 낮은 온도에서 공정이 가능하다는 장점으로 각광받고 있지만 낮은 하 이동도를 가지는 단점이 있다[12,13].

본 연구에서는 이러한 단점을 개선하기 위해 사후 열처리를 통해 산화아연 박막의 결정성을 향상시키고 전하 이동도를 증가시키고 연마된 구리 기판을 사용하여 용액 공정을 통해 산화아연 박막을 제작한 후 투명한 유연한 기판 위로 전사하는 연구를 진행하였다[2]. 제작된 산화아연 박막의 두께, 표면 거칠기, 열처리에 따른 구조 변

[†]E-mail: shkong@knu.ac.kr

화를 분석하여 용액공정을 통한 산화아연 박막의 최적화된 제작조건 확립에 관하여 연구를 진행하였다.

2. 결과 및 고찰

2.1 용액공정을 이용한 산화아연 박막의 제작

본 연구에서는 용액공정을 이용하여 산화아연 박막을 제작하기 위해 먼저 zinc acetate dihydrate($Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$)를 methoxyethanol에 0.05 M을 70°C를 1시간 동안 교반 하여 희석시켰다. 구리박막(Sigma Aldrich社)을 chemical mechanical polishing (CMP)를 이용하여 표면을 연마하였다. 희석된 zinc acetate dihydrate용액을 연마된 구리기판 위 spin coater로 1000 revolution per minute(RPM)으로 30초 동안 코팅을 하였다. 코팅된 기판은 가열기(hot plate)에서 300°C 온도에서 2분간 열처리하였다. 이와 같은 방법으로 스핀 코팅과 열처리를 5회에서 20회 반복 진행되었다.

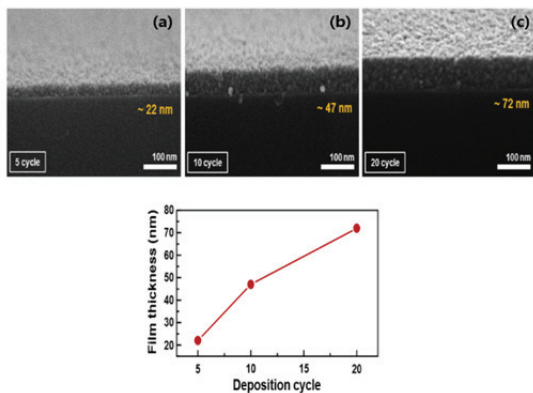


Fig. 1. SEM image of the surface for the ZnO thin films post annealed at various deposited cycles.

2.2. 제작된 산화아연 박막의 전기적 특성변화

형성된 박막이 균일한 두께를 지니고 있으며, 코팅과 열처리 반복 횟수가 증가할수록 형성된 산화아연 박막의 두께가 증가하는 양상을 확인할 수 있었다.

제작된 산화아연 박막을 이용하여 bottom gate 형태의 전계효과 트랜지스터를 제작하였다. 측정 방법은 Fig 2에서 보는 방식으로 측정을 하였으며, 채널의 길이와 폭은 135 μm 와 925 μm 이며, 게이트 절연막의 종류와 두께는 SiO_2 로 300 nm이다. 측정 결과 I-V 곡선에서 낮은 전압영역에서 선형으로 증가하다 높은 전압영역에서 포화되는 양상을 보이며 이는 전형적인 n-type 반도체 특성을 보이는 것을 확인할 수 있다.

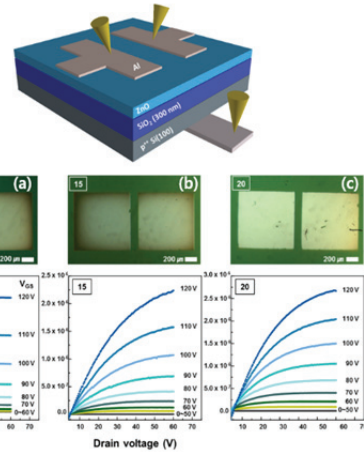


Fig. 2. Simulation of ZnO-based field effect transistor, microscope image, and I-V curve.

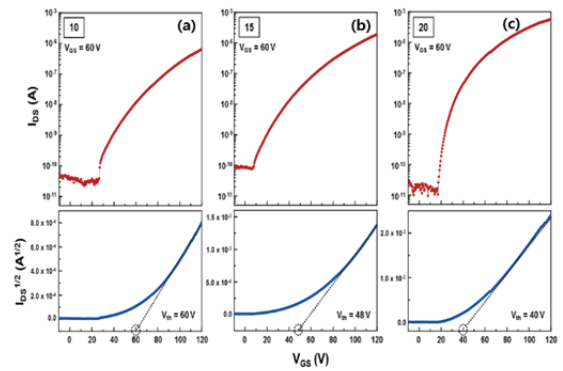


Fig. 3. I_{DS} - V_{GS} and $I_{DS}^{1/2}$ - V_{GS} curve according to the change of spincoating/heat treatment.

Fig 3은 I_{DS} - V_{GS} 곡선과 $I_{DS}^{1/2}$ - V_{GS} 곡선을 통해 20번 코팅한 산화아연 박막의 경우 문턱전압(threshold voltage; V_{th})이 40 V, on-off 전류비가 약 10^6 , 이동도(mobility)가 0.03 $cm^2/V \cdot s$ 임을 확인할 수 있었다. 이 실험결과를 토대로 양질의 산화아연 박막의 제작을 위해서는 사후 열처리 과정이 필요하다고 판단하였다.

2.2.1 산화아연 박막의 열처리에 따른 구조적변화

앞선 실험결과를 토대로 하여 희석된 zinc acetate dihydrate 용액을 연마된 구리기판 위 spin coater로 1000 revolution per minute(RPM)으로 30초동안 코팅을 하였다. 코팅하는 조건은 1분간 150°C로 20회를 반복하여 얇은 박막을 제작하였다. 코팅이 끝난 구리기판은 200°C, 400°C, 600°C로 각각 1시간 동안 사후 열처리를 진행하였다. 열처리가 끝난 구리

기판을 투명한 기판에 전사하기 위해 다음과 같이 실험을 진행하였다. 이 실험에서는 일반적으로 그래핀을 전사하는 방법인 poly(methyl methacrylate) (PMMA)-assisted wet transfer 방법으로 전사를 하였다. 우선 연마된 구리 기판 위에 산화아연을 스펀코팅 방법을 통해 제작하고, 그 위에 PMMA를 스펀코팅 하였다. 그 후 구리 용해액(CE-100)을 이용하여 구리를 식각하였다.

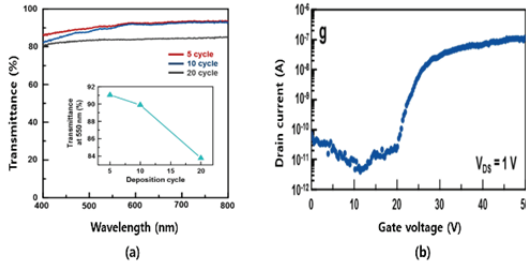


Fig. 4. (a) SEM image of the surface for the ZnO thin films post annealed at various temperature. (400 °C, 600 °C).

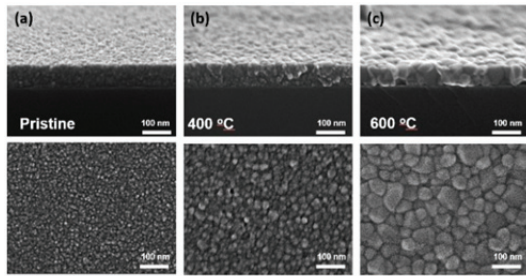


Fig. 5. X-ray diffraction (XRD) pattern of ZnO thin film deposite on SiO₂ substrate.

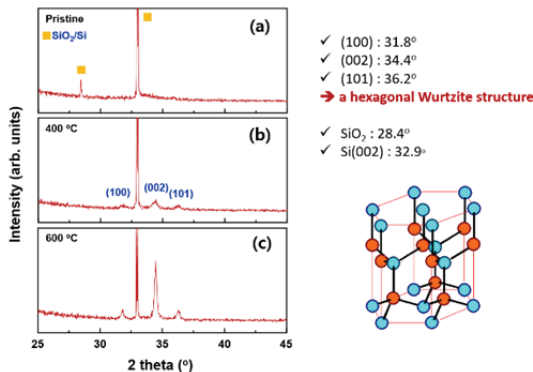


Fig. 6. XPS pattern of ZnO thin film.

사후 열처리를 통해 산화아연 박막의 구조적 특성 변화를 확인하였다. 열처리와 코팅 반복횟수는 20회씩 실험

을 하였고 사후 열처리 조건은 200 °C, 400 °C, 600 °C에서 1시간씩 대기압 조건에서 진행하였다. 이는 열처리 온도가 증가함에 따라 형성된 산화아연 박막의 grain 크기가 증가하는 양상을 확인할 수 있었다. 또한 온도가 증가함에 따라 형성된 산화아연 박막의 표면 거칠기 또한 증가하는 양상을 확인할 수 있었다.

400 °C 이상의 사후 열처리 온도에서 산화아연 (100), (002), (101) 피크가 각각 31.8°, 34.4°, 36.2°에서 나타나는 것으로 보아 hexagonal Wurtzite 구조임을 확인할 수 있었다. 또한 Fig. 6에서는 광 전자 분광기를 통해 Zn 2p core level 스펙트럼을 확인한 결과 ZnO가 형성된 것을 확인할 수 있으며, O 1s core level 스펙트럼을 통해 열처리 온도차가 증가함에 따라 결합관련 피크(OH-, -CO₃, O₂)의 세기가 감소하는 양상을 확인하였다.

제작된 산화아연 박막을 투명하고 유연한 기판위에 전사하여 투과도를 측정하였다. 스펀코팅과 열처리의 반복 횟수가 증가함에 따라 제작된 산화아연 박막의 투과도가 감소하는 양상을 확인할 수 있으며, 20회 반복한 경우 550 nm 파장의 빛에 대한 투과도가 83.7%인 것을 확인할 수 있었다.

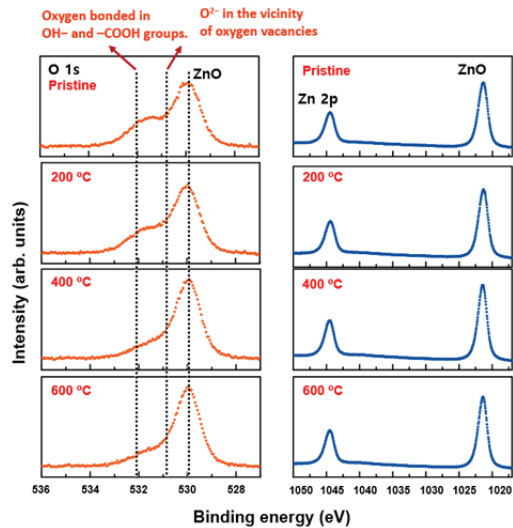


Fig. 7. Transparency (a) and electrical properties of ZnO thin film transferred to transparent flexible electrode (b).

또한 고농도로 도핑 된 p-type 실리콘 웨이퍼 기판에 전사하여 전기적 특성을 확인하였다. ZnO를 채널층으로 이용하였고, 알루미늄을 100 nm 두께로 열 증착기를 이용하여 증착하였다. 그 결과 게이트 전압과 드레인 전류의 관

계를 보면 n-type behavior를 보이는 것을 확인할 수 있고 on-off비가 약 10^5 인 것을 확인할 수 있었다. 이는 비교적 낮은 수치로 제작된 산화아연 박막이 원하는 기관으로 전사과정에서 생기는 여러가지 결함(갈라짐)으로 인해 특성이 낮게 나왔다고 생각된다. 그러나 투명하고 유연한 기관위에 전사된 산화아연 박막의 광 투과도를 측정할 결과 550 nm의 파장에서 약 89%의 비교적 우수한 광학 투과도를 가지고 있음을 확인할 수 있었다.

3. 결 론

본 논문에서는 용액공정을 통해 연마된 구리 기관위에 산화아연박막을 코팅 한 후 열처리를 통해 박막의 결정성을 향상시키고, 투명하고 유연한 기관에 전사하는 연구를 진행하였다. 비교적 공정비용이 저렴하다는 장점을 가지는 용액공정과 열처리를 통해 투명하고 유연한 기관에 박막을 전사를 하여 구조적 변화를 확인하고 박막의 전기적 특성을 확인하였다. 그 결과 열처리 변화에 따라 구조적으로 향상되는 것을 확인하였고, 전기적 특성은 n-type behavior를 보이는 것을 확인할 수 있고 on-off ratio가 약 10^5 인 것을 확인할 수 있었고 박막의 투과도를 측정할 값도 550 nm의 파장에서 약89%의 우수한 광학 투과도를 가지고 있음을 확인하였다. 투과도는 뛰어나지만 비교적 낮은 전기적 특성의 결과는 박막을 전사하는 과정에서의 여러가지 결함(박막의 갈라짐)으로 인하여 낮게 나타난 것으로 판단된다.

본 연구에서의 결과를 바탕으로 향후 이러한 문제점들을 보완하고 개선한다면 투명하고 유연한 기관에 고효율 TFTs 소자를 제작하여 여러 분야에서 다양한 소자 분야만 아니라 다양한 센서에도 응용 할 수 있을 거라 예상된다.

감사의 글

이 논문은 2015학년도 경북대학교 전임교원 연구년 교수 연구비에 의하여 연구되었음(This research was supported by Kyungpook National University Research Fund, 2015).

참고문헌

1. Taur, Y. & Ning, H. T. Fundamentals of Modern VLSI Devices (Cambridge Univ. Press, New York, 1988).
2. Soon Yeol Kwon, Dong Geon Jung, Young Chan Choi, Jae Yong Lee and Seong Ho Kong., "Transfer of heat-treated ZnO thin-film plastic substrates for transparent and flexible thin-film transistors," Journal of sensor

- science and Technology Vol. 27(3), pp. 182-185, 2018
3. Kuo, Y. (ed.) Thin Film Transistors: Materials and Processes (Kluwer Academic, Dordrecht, 2004).
4. Edzer Huitema, Gerwin Gelinck, Bas van der Putten, Eugenio Cantatore, Erik van Veenendaal, Laurens Schrijnemakers, Bart-Hendrik Huisman, Dago de Leeuw., "Plastic Transistors in Active-Matrix Displays," Nature 414, 599, 2001.
5. Schwarz, U. T., English, L. Q. & Sievers, A. J., "Experimental generation and observation of intrinsic localized spin wave modes in an antiferromagnet," Phys. Rev. Lett, Vol. 83, pp. 223-227, 1999.
6. Xie, A., van der Meer, L., Hoff, W. & Austin, R. H., "Long-lived Amide I vibrational modes in myoglobin," Phys. Rev. Lett, Vol. 84, 5435-5438, 2000.
7. Markovich, T., Polturak, E., Bossy, J. & Farhi, E., "Observation of a new excitation in bcc He-4 by inelastic neutron scattering," Phys. Rev. Lett. Vol. 88, 195-301, 2002.
8. Chikamatsu, M., Tanaka, M. & Yamazaki, H., "Effect of magnetic dipolar interaction on antiferromagnetic resonance in $(C_2H_5NH_3)_2CuCl_4$," J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 50, 2876-2883, 1981.
9. De Jongh, L. J. in Physics and Chemistry of Materials with Low-Dimensional Structures (ed. Le'vy, F.) 1-51 (Kluwer Academic, Dordrecht, 1990).
10. K. Song, J. Noh, T. Jun, Y. Jung, H.-Y. Kang, and J. Moon., "Flexible solution-deposited ZnO thin-film transistors," Adv. Mater., Vol. 22(38), pp. 4308-4312, 2010.
11. R. R. Nair, P. Blake, A. N. Grigorenko, K. S. Novoselov, T. J. Booth, T. Stauber, N. M. R. Pere, and A. K. Geim., "Fine structure constant defines visual transparency of graphene," Science, Vol. 320(5881), pp. 1308-1308, 2008.
12. K. S. Kim, Y. Zhao, H. Jang, S. Y. Lee, J. M. Kim, K. S. Kim, J.-H. Ahn, P. Kim, J.-Y. Choi, and B. H. Hong., "Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes," Nature, Vol. 457(7230), pp. 706-710, 2009.
13. S. Y. Park, K. Kim, K.-H. Lim, B. J. Kim, E. Lee, J. H. Cho, and Y. S. Kim., "The structural, optical, and electrical characterization of high performance, low-temperature and solution-processed alkali metal-doped ZnO TFTs," J. Mater. Chem. C, Vol. 1(7), pp. 1383-1391, 2013.

접수일: 2018년 6월 15일, 심사일: 2018년 6월 20일,
게재확정일: 2018년 6월 21일