

논문 2008-45SD-5-3

C₆₀(buckminsterfullurene) 홀주입층을 적용한 유기박막트랜지스터의 성능향상

(Performance enhancement of Organic Thin Film Transistor using C₆₀ hole injection layer)

이 문 석*

(Moonsuk Yi)

요 약

본 연구에서는 유기반도체인 펜타센과 소스-드레인 금속전극사이에 C₆₀을 홀주입층으로 적용한 유기박막트랜지스터를 제작하여 C₆₀을 삽입하지 않은 소자와의 전기적특성을 비교하였다. C₆₀/Au 이중전극을 사용한 소자의 경우 Au단일전극을 사용한 소자와 비교하였을 때 전하이동도는 0.298 cm²/V·s에서 0.452 cm²/V·s, 문턱전압의 경우 -13.3V에서 -10.8V로 향상되었으며, contact resistance를 추출하여 비교하였을 경우 감소함을 확인할 수 있었다. 이러한 성능의 향상은 C₆₀을 Au와 pentacene 사이에 삽입하였을 경우 Au-pentacene 간의 원하지 않는 화학적 반응을 막아줌으로써 홀 주입장벽을 감소시켜 홀 주입이 향상되었기 때문이다. 또한 Al을 전극으로 적용한 OTFT도 제작하였다. 기존에 Al은 OTFT에 단일전극으로 사용하였을 경우 들간의 높은 홀 주입장벽으로 인해 채널이 거의 형성되지 않았으나, C₆₀/Al 이중전극을 사용한 소자의 경우 전하이동도와 전류점별비는 0.165 cm²/V·s, 1.4×10⁴으로써 Al을 단일전극으로 사용하는 소자의 전기적 특성에 비해 크게 향상되어진 소자를 제작할 수 있었다. 이는 C₆₀과Al이 접합시에 interface dipole의 형성으로 Al의 vacuum energy level이 변화로 인한 Al의 work function이 증가되어 pentacene과 Al간의 hole injection barrier가 감소되었기 때문이다.

Abstract

In this study, we fabricated Organic Thin Film Transistors (OTFTs) with C₆₀ hole injection layer between organic semiconductor (pentacene) and metal electrode, and we compared the electrical characteristics of OTFTs with/without C₆₀. When the C₆₀ hole injection layer was introduced, the mobility and the threshold voltage were improved from 0.298 cm²/V·s and -13.3V to 0.452 cm²/V·s and -10.8V, and the contact resistance was also reduced. When the C₆₀ is inserted, the hole injection was enhanced because the C₆₀ prevent the unwanted chemical reaction between pentacene and Au. Furthermore, we fabricated the OTFTs using Al as their electrodes. When the OTFTs were made by only aluminum electrode, the channel were not mostly made because of the high hole injection barrier between pentacene and aluminum, but when the C₆₀ layer with an optimal thickness was applied between aluminum and pentacene, the device performances were obviously enhanced because of the vacuum energy level shift of Al and the consequent decrease of the hole injection barrier which was induced by the interface dipole formation between C₆₀ and Al. The mobility and I_{ON}/I_{OFF} current ratio of OTFT with C₆₀/Al electrode were 0.165 cm²/V·s and 1.4×10⁴ which were comparable with the normal Au electrode OTFT.

Keywords : Pentacene, C₆₀, OTFT, Organic Thin Film Transistor, hole injection

I. 서 론

* 정회원 부산대학교 전자전기통신공학부
(School of Electrical Engineering, Pusan National University)

※ 이 논문은 부산대학교 자유과제 학술연구비(2년)에 의하여 연구되었음.

접수일자: 2008년1월16일, 수정완료일: 2008년4월10일

유기박막트랜지스터(organic thin film transistor ; OTFT)는 기존의 실리콘을 기반으로 하는 트랜지스터가 가질 수 없는 장점으로 인해 최근 들어 전 세계적으로 매우 활발히 연구개발이 이루어지고 있다. 이는 유

기 반도체가 반도체의 전기적, 광학적 특성과 다양한 물성을 가지고 있을 뿐만 아니라, 인쇄법을 포함하는 매우 저렴한 공정기술로 제조가 가능하기 때문에 대면적 소자를 경제적으로 구현할 수 있기 때문이다. 또한 플라스틱 기판 등 유연한 기판 위에 소자를 구현할 수 있는 장점으로 인해 유기발광다이오드(organic light emitting diode ; OLED), 유기태양전지(organic solar cell), flexible display, 스마트카드, RFID(radio frequency identification) 등의 응용분야의 핵심소자로 활용될 수 있기 때문에 활발한 연구가 수행되어 지고 있다.^[1~3]

유기반도체와 금속전극사이에는 금속전극의 일함수(work function)와 유기반도체의 HOMO(highest occupied molecular orbital) level간의 mismatch로 인하여 존재하거나 유기반도체와 금속전극간의 상호작용으로 생성되어진 높은 홀 주입장벽으로 인하여 높은 contact resistance가 존재함으로써 소자의 성능에 나쁜 영향을 미치게 된다. 이러한 이유로 최근 OTFT의 성능을 향상시키기 위한 방법 중 하나로 유기반도체와 소스-드레인 전극사이에 홀 주입층을 삽입하여 전하주입 특성을 향상시키는 연구가 활발히 이루어지고 있다.^[4~5]

본 연구에 사용되어진 C₆₀은 OLED분야의 hole injection material로 활발히 연구되어지고 있으며, 금속과의 접합 시 Fermi level alignment에 관련된 band bending이나 interface dipole 형성과 같은 상호작용으로 인한 metal의 vacuum energy level의 변화에 따라 work function을 조절하는 특성을 가짐으로 인해, 이러한 C₆₀-metal의 강한 상호작용은 energy barrier를 낮추어 전하주입효율을 향상시킬 수 있다.^[6]

본 연구에서는 소스-드레인 전극(Au, Al)과 유기반도체인 pentacene사이에 C₆₀박막을 삽입하여 OTFT 제작하였을 경우 전하주입이 향상되어 C₆₀을 삽입하지 않은 소자에 비해 전기적 특성이 크게 향상되었음을 보여준다.

II. 실험방법

그림 1에서 이 연구에 사용된 OTFT의 구조를 나타내었다. 본 연구에서는 top contact OTFT를 제작하였으며, 제작공정은 유리기판에 ITO(indium thin oxide) 전극이 코팅되어진 기판을 바탕으로 절연층은 스펀코팅 방법으로 5000Å 두께의 cross-linked PVP를 사용하였다. 활성층으로 펜타센을 OMBD(organic molecular beam

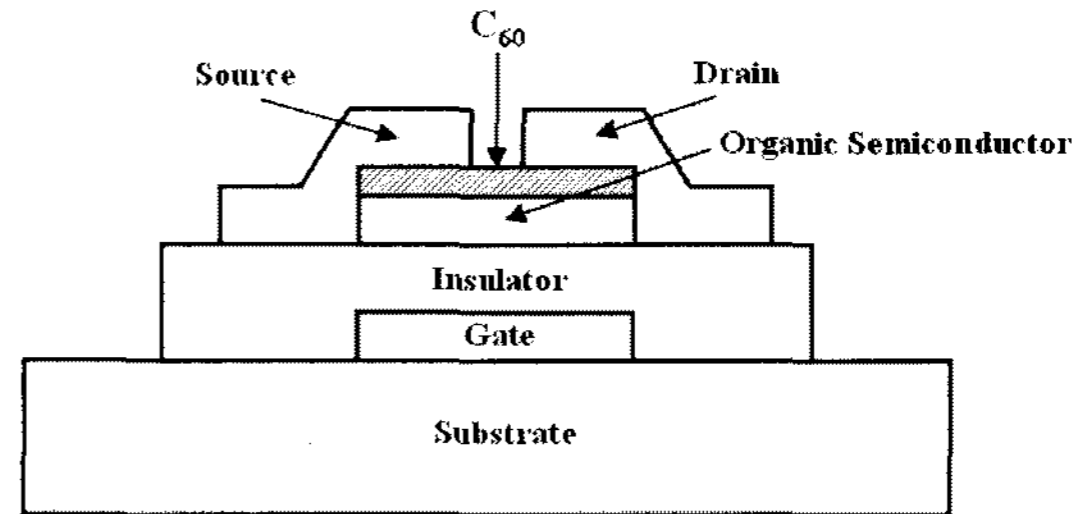


그림 1. 본 연구에 사용되어진 OTFT의 구조
Fig. 1. Schematic of OTFT used in this study.

deposition)장비를 이용하여 0.3Å/s의 증착률로 450Å 증착하였고, 홀 주입층으로써 C₆₀을 0.2~0.3Å/s의 증착률로 두께를 0~200Å으로 달리하며 증착하였고, 마지막으로 Au와 Al을 500Å 증착하여 게이트, 소스, 드레인 전극으로 사용하였다. 모든 공정은 1×10⁻⁶Torr이하의 진공상태에서 증착되었으며, 채널폭(W)은 1000μm, 채널길이(L)는 각각 50μm와 100μm이다. 완성되어진 OTFT의 전기적 특성은 반도체소자특성분석기(Elecs Co. EL423)을 이용하여 측정하였다.

III. 본론 (결과 및 토의)

1. Au-pentacene 사이에 C₆₀ 홀 주입층을 삽입한 OTFT

기존의 pentacene을 활성층으로 하여 사용되어지는 OTFT의 제작에 있어 Au는 pentacene의 HOMO level (5.1eV)과 비슷한 일함수 (5.2eV)를 가짐으로 인해 가장 많이 사용되어진 물질이다. 그럼에도 불구하고 최근 XPS(X-ray photoelectron spectroscopy)와 UPS (ultra violet photoelectron spectroscopy)등을 통한 이들 계면에 대한 연구를 보면 둘 간의 접합 시 interface dipole의 존재로 인해 Au의 일함수가 변화되어 높은 홀 주입장벽(~0.85eV) 존재함이 보고되었다.^[7] 소자의 성능을 향상시키기 위해서는 pentacene-Au 간의 원하지 않는 화학적 반응에 의한 interface dipole의 형성을 억제하여 순수한 Au의 work function을 유지해야 한다. Au-pentacene 계면의 특성을 향상시키기 위해 C₆₀ 홀 주입층을 삽입함으로써 Au-pentacene 사이의 원하지 않는 화학적 반응을 막아주어 홀 주입을 원활히 하는데 목적이 있다.

우선 C₆₀의 두께를 다르게 하여 pentacene표면위에 증착하였을 때 AFM(Atomic Force Microscope)을 통해 표면상태를 관찰하였다. 그림 2에서는 pentacene의 표면상태와 pentacene위에 C₆₀을 15Å 증착하였을 경우

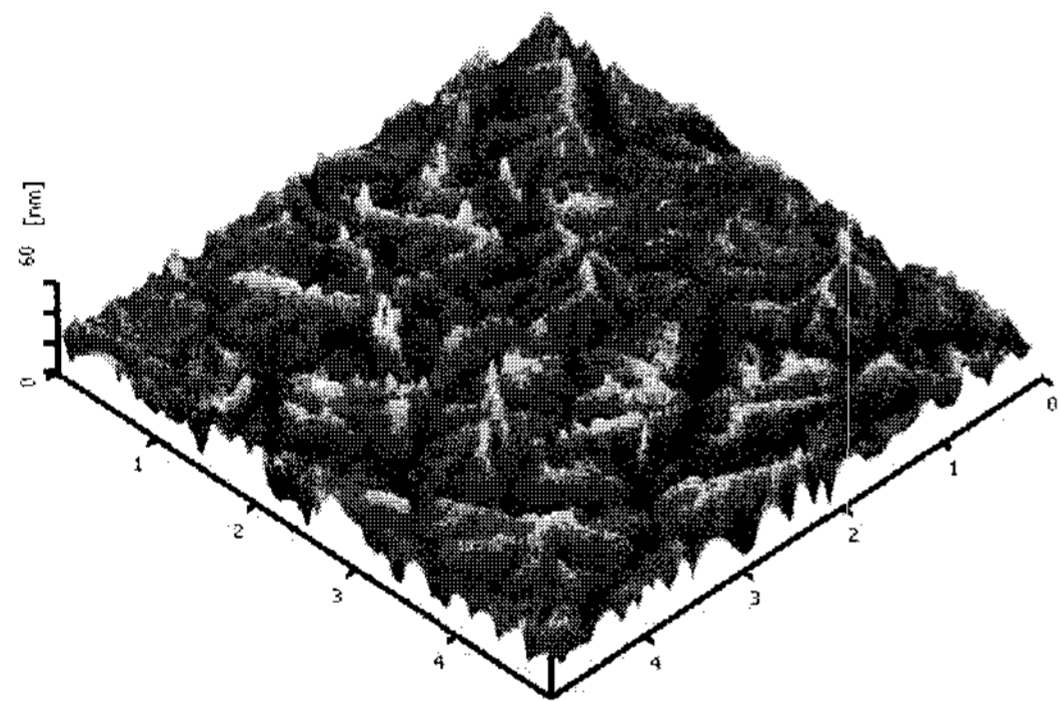
의 표면상태를 보여주고 있다.

C₆₀을 15Å 증착한 표면을 살펴보면 섬 형태의 C₆₀이 pentacene 위를 완전히 덮고 있는 것을 볼 수 있다. 이보다 낮은 두께의 C₆₀이 증착되었을 경우에는 표면을 완전히 덮지는 못하였으며, C₆₀이 평균 15Å 이상으로 증착되었을 경우 pentacene 표면을 완전히 덮는 것을 확인할 수 있었다. 그러므로 C₆₀의 두께를 15Å 이상 증착하여야 Au가 pentacene으로 침투하여 생성되는 원하지 않는 화학적 반응을 막을 수 있다.

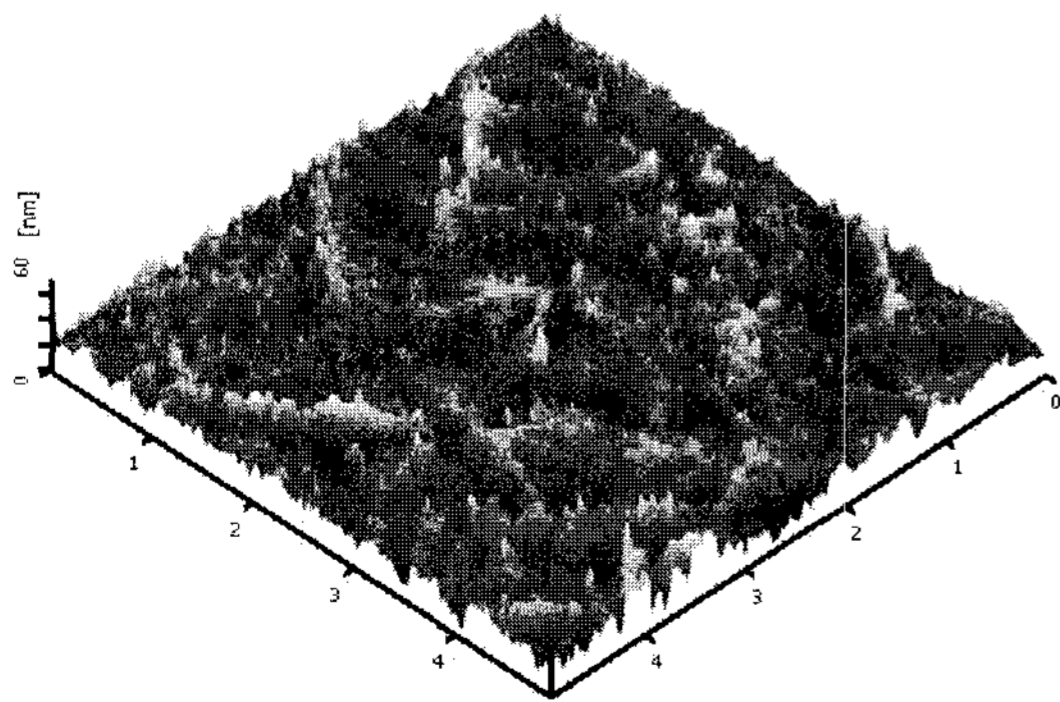
C₆₀의 두께를 다르게 삽입하여 제작되어진 소자의 전기적 특성을 측정하였다.

그림 3과 4에서는 V_{SD}-I_D 출력특성곡선으로서 게이트 전압과 소스-드레인 전압의 변화에 따른 드레인전류의 변화량을 나타내고 있다. C₆₀이 삽입되어진 소자의 경우 C₆₀을 삽입하지 않은 소자에 비해 홀 주입이 향상되어 최대전류량이 6.03×10⁻⁶A에서 1.05×10⁻⁵A로 증가한 것을 볼 수 있다.

그리고 삽입한 C₆₀의 두께에 따라 제작되어진 소자의 전하이동도와 Contact resistance를 추출하여 변화를 살



(a)



(b)

그림 2. (a) pentacene 표면 (b) pentacene 표면에 C₆₀을 15Å 증착한 표면의 AFM 이미지 (5μm×5μm)
Fig. 2. AFM surface images of (a) pentacene and (b) C₆₀(15Å) on pentacene.

펴보았다.

전하이동도(μ)는 포화영역(V_{DS}>V_{GS}-V_T)에서 아래 식에 따라서 계산되어 졌으며, 두께에 따른 변화는 그림 5에 나타내었다.

$$\mu = \frac{2L}{WC_i} \left(\frac{\partial \sqrt{I_D}}{\partial V_{GS}} \right)^2$$

(L, W : 채널길이와 폭, C_i : 단위면적당 게이트커패시턴스, I_D : 드레인전류, V_{GS} : 게이트-소스간 전압)

C₆₀이 15Å이 삽입되어진 경우 가장 높은 특성을 나타내었으며, 이때 이동도는 C₆₀을 삽입하지 않은 소자에 비해 0.298 cm²/V·s에서 0.452 cm²/V·s로 향상되어 졌다. 하지만 C₆₀의 두께가 15Å을 넘어서면서 소자의 특성은 점점 감소하였는데, 이러한 변화는 C₆₀두께의 증가에 따른 홀의 터널링 확률이 감소하기 때문이다.^[8]

또한 Contact resistance는 선형지역(V_{DS}=-1)에서 아

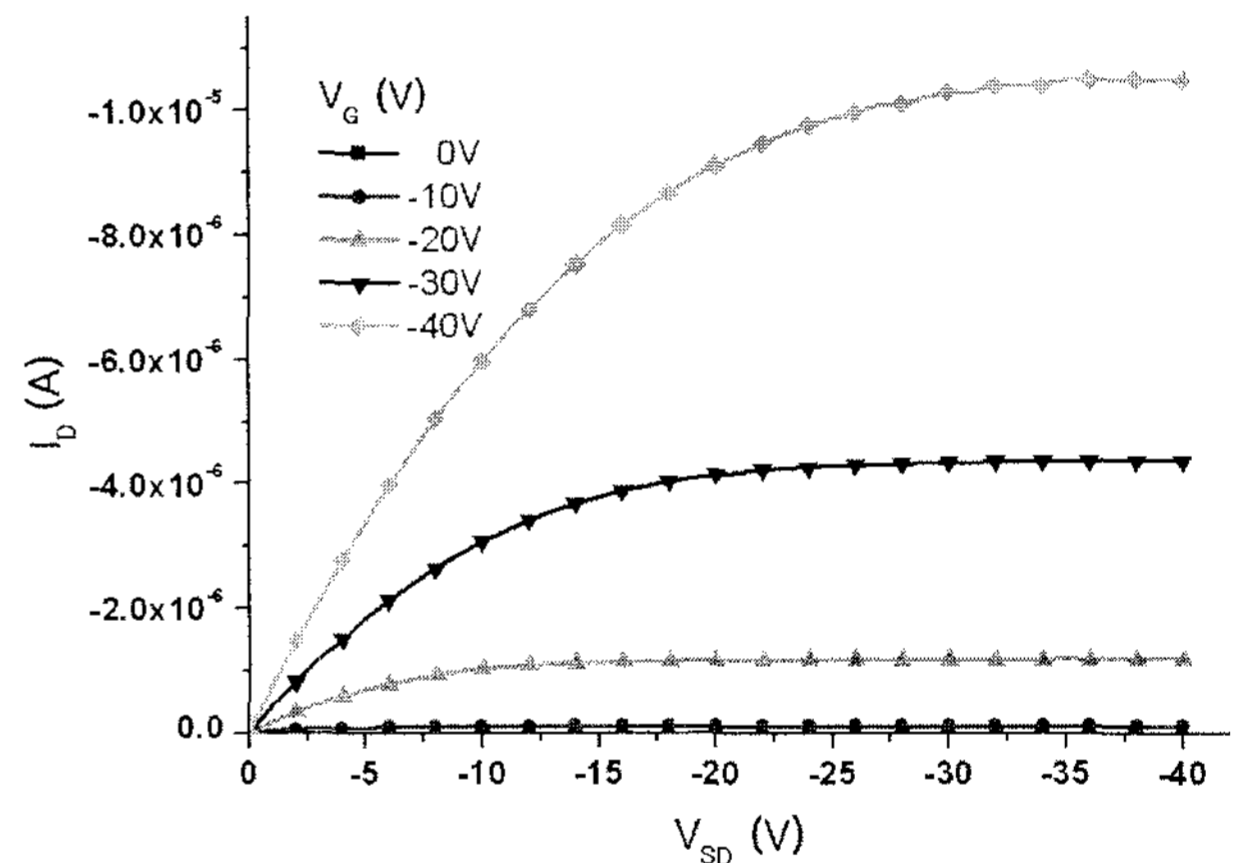


그림 3. Au를 전극으로 사용한 OTFT의 V_{SD}-I_D 특성곡선
Fig. 3. V_{SD}-I_D output curve of OTFT with Au electrode.

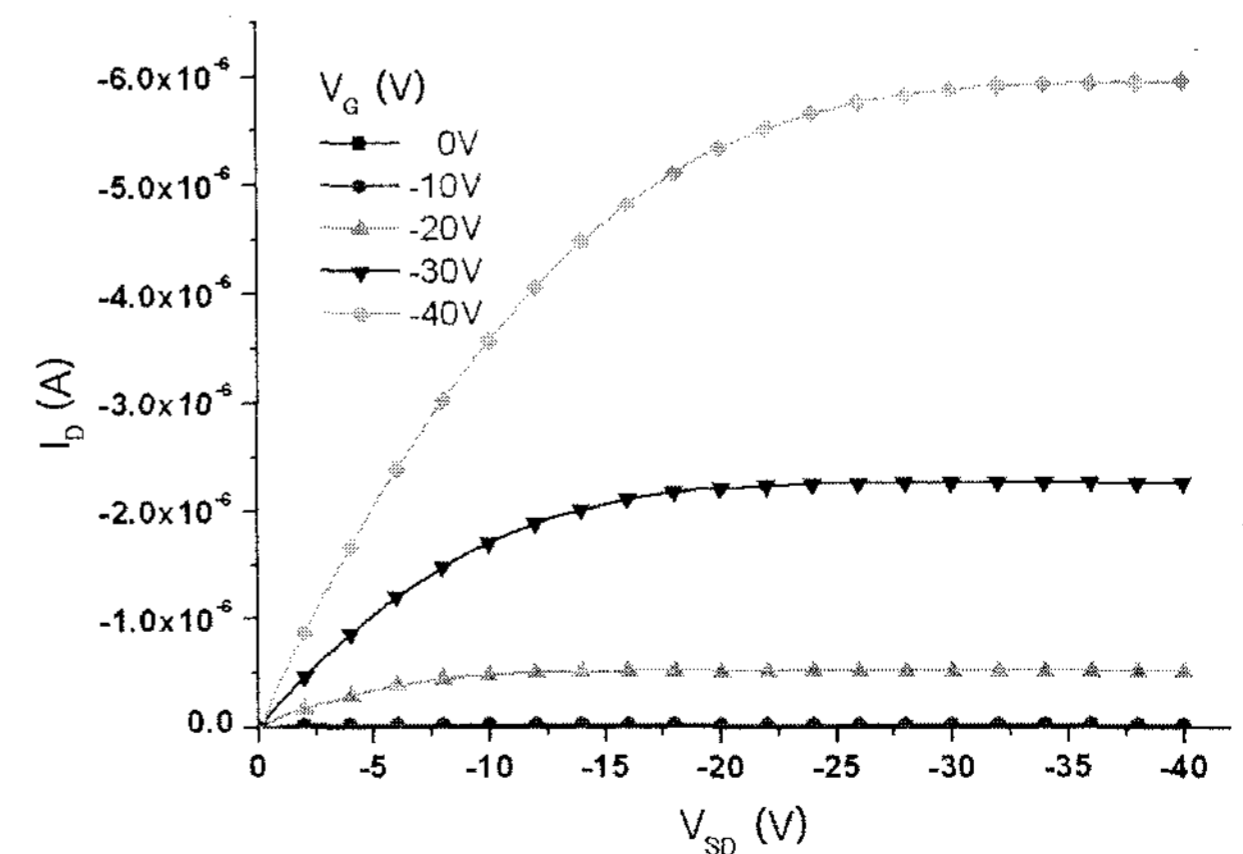


그림 4. C₆₀(15Å)/Au 이중전극을 사용한 OTFT의 V_{SD}-I_D 특성곡선
Fig. 4. V_{SD}-I_D output curve of OTFT with C₆₀(15Å)/Au electrode.

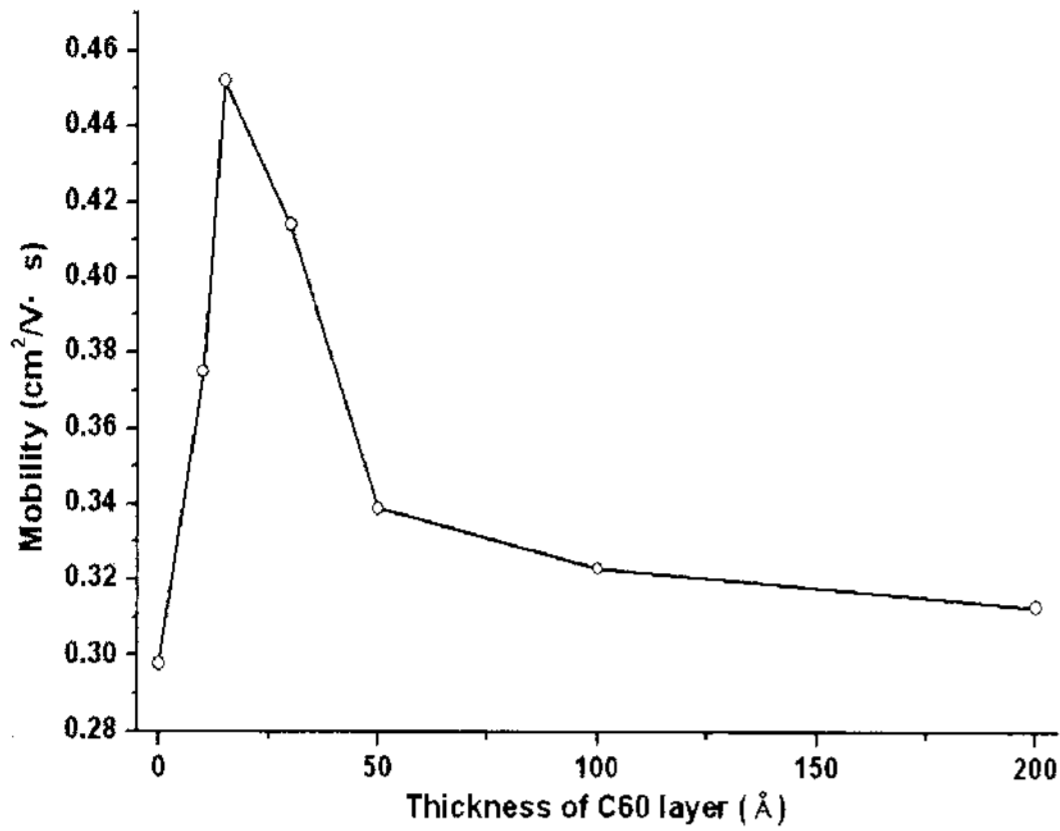


그림 5. C₆₀의 두께에 따른 OTFT의 전하이동도
Fig. 5. Mobility of OTFT with different C₆₀ thickness.

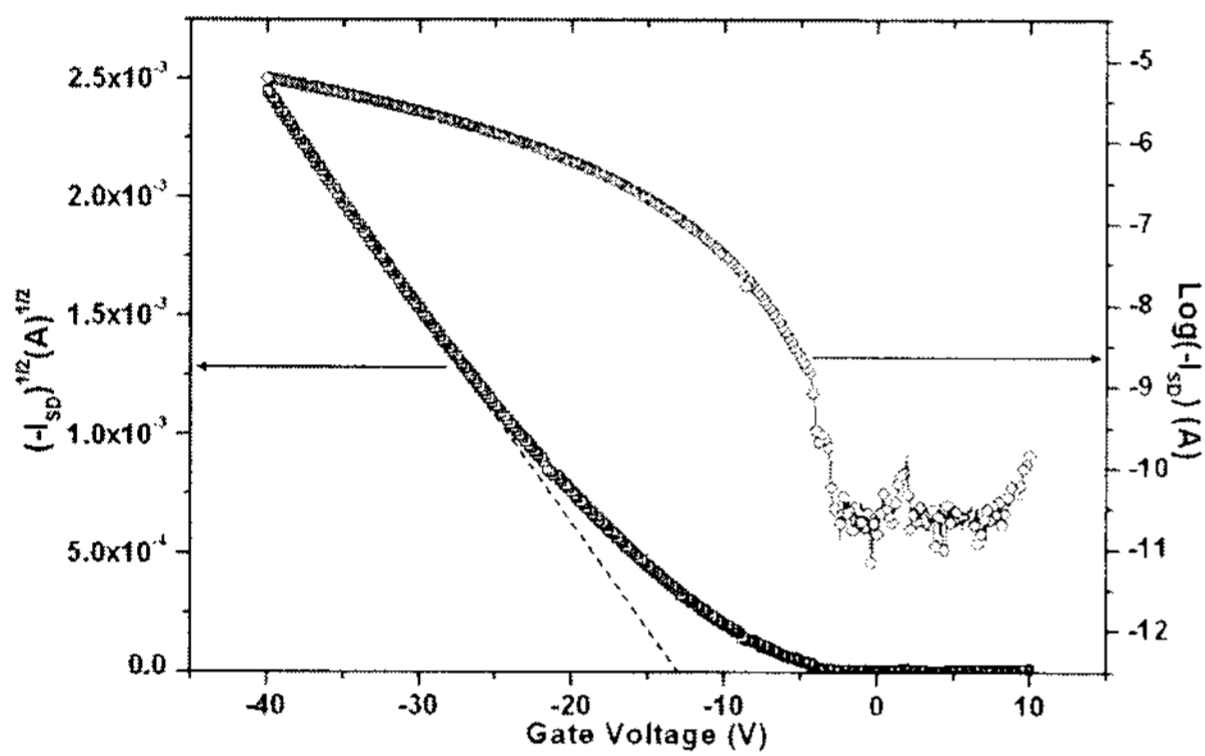


그림 6. Au를 전극으로 사용한 OTFT의 V_G-I_D 특성곡선
Fig. 6 V_G-I_D transfer curves of OTFT with Au electrode.

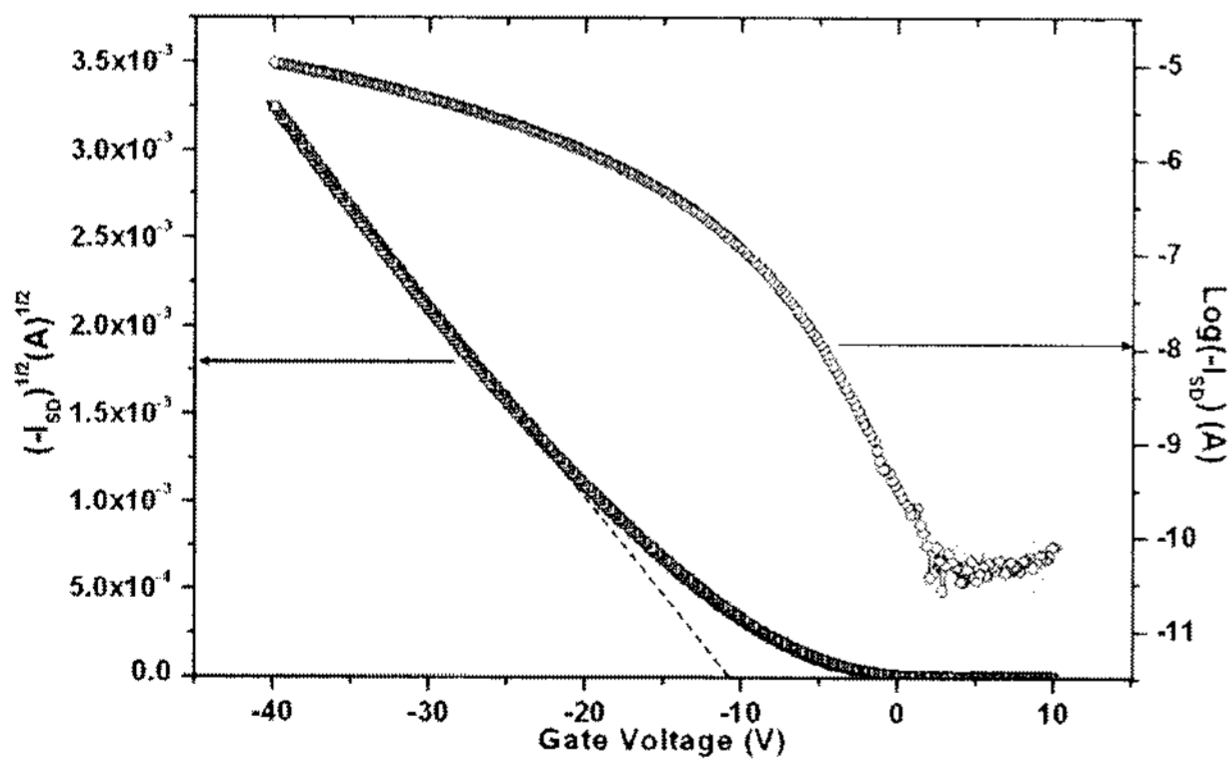


그림 7. C₆₀(15Å)/Au를 전극으로 사용한 OTFT의 V_G-I_D 특성곡선
Fig. 7. V_G-I_D transfer curves of OTFT with C₆₀(15Å)/Au electrode.

래의 식에 따라 추출되었다.

$$R_{on} = R_{ch} + R_S + R_D \approx \frac{L}{W\mu C_i (V_{GS} - V_T)} + R_P$$

Contact resistance(R_P)는 소스와 드레인의 저항의 합이며 이와 채널저항의 합이 전체저항이다. 또한 전체저

항은 $\partial V_{DS}/\partial I_D$ 로 정의되어 진다.^[9] 추출되어진 Contact resistance는 C₆₀을 15Å의 두께로 삽입한 경우 $8.56 \times 10^5 \Omega$ 에서 $5.30 \times 10^5 \Omega$ 으로 낮아진 것을 확인할 수 있었으며, Contact resistance가 낮아졌다는 것은 C₆₀의 삽입으로 pentacene-Au 계면의 원하지 않는 화학적 반응으로 인해 존재하는 홀 주입장벽이 낮아짐으로써 유기 반도체 층과 소스-드레인 전극간의 홀 주입이 향상되었음을 알 수 있다.

그리고 그림 6과 7에서는 전류점멸비 (I_{ON}/I_{OFF} current ratio)와 문턱전압(threshold voltage)특성을 나타내고 있다. 문턱전압의 경우 C₆₀을 삽입한 소자의 경우 홀 주입의 향상에 따라 C₆₀을 삽입하지 않은 소자에 비해 -13.3V에서 -10.8V로 감소되었으며 전류점멸비는 각각 6.46×10^6 과 8.76×10^5 으로 거의 비슷하였다.

적당한 두께의 C₆₀을 삽입하였을 경우 C₆₀을 삽입하지 않은 소자에 비해 홀 주입향상으로 전기적 특성이 전체적으로 향상된 것을 확인할 수 있었다.

2. Al-pentacene 사이에 C₆₀ 홀 주입층을 삽입한 OTFT

Al은 좋은 부식저항을 가지는 금속물질이다. 하지만 P-type OTFT의 전극으로 적용하는데 있어 낮은 일함수(4.2eV)로 pentacene과의 접합 시 높은 홀 주입장벽 (~0.8eV)으로 인해 전하의 주입이 잘 되지 않아 pentacene을 바탕으로 하는 OTFT의 전극으로 적용하기에는 적합하지 않았다. 하지만 최근 Al과 C₆₀의 접합 시 상호작용으로 인해 생성되어진 interface dipole영향으로 그림 8에 나타낸 것과 같이 Al의 vacuum level shift에 따른 일함수가 4.3eV에서 5.2eV로 변화되어지는 연구가 보고 되었다.^[10~11] 이 연구결과를 바탕으로 우리는 Al-pentacene사이에 두께를 다르게 한 C₆₀를 삽입하여 제작되어진 소자의 특성을 살펴보았다.

그림 9와 10에서는 C₆₀을 삽입한 소자와 삽입하지 않은 소자의 V_G-I_{SD} 출력특성곡선으로서 게이트 전압의 변화에 따른 드레인전류의 변화량을 나타내고 있다. C₆₀을 삽입한 소자의 경우 홀 주입이 향상되어 전류량이 크게 증가한 것을 볼 수 있으며, C₆₀(50Å)/Al을 전극으로 이용한 OTFT의 전하이동도는 $0.165 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 로써 단지 Al만을 전극으로 이용한 OTFT의 전하이동도 $5.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 에 비해 크게 향상되어진 특성을 보였다. 이는 Al만을 전극으로 사용하였을 경우 pentacene-Al 간의 높은 홀 주입장벽으로 인해 전하의 주입이 잘 되지 않았다는 것을 알 수 있으며, C₆₀을 삽

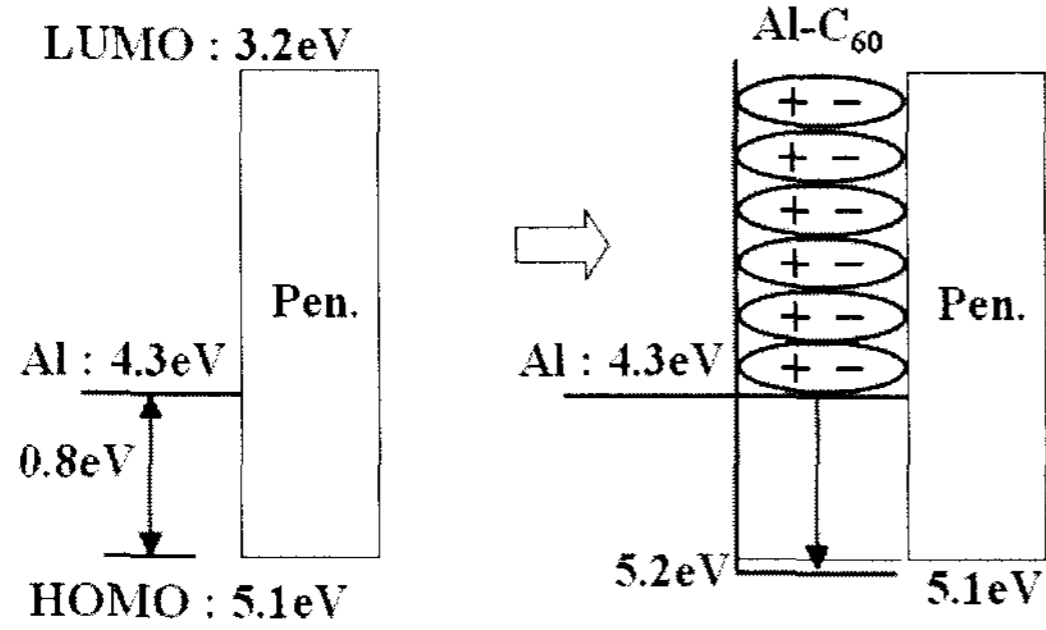


그림 8. 계면의 에너지장벽 변화를 나타내는 다이어그램

Fig. 8. The schematic diagram for the interfacial energy barrier shift.

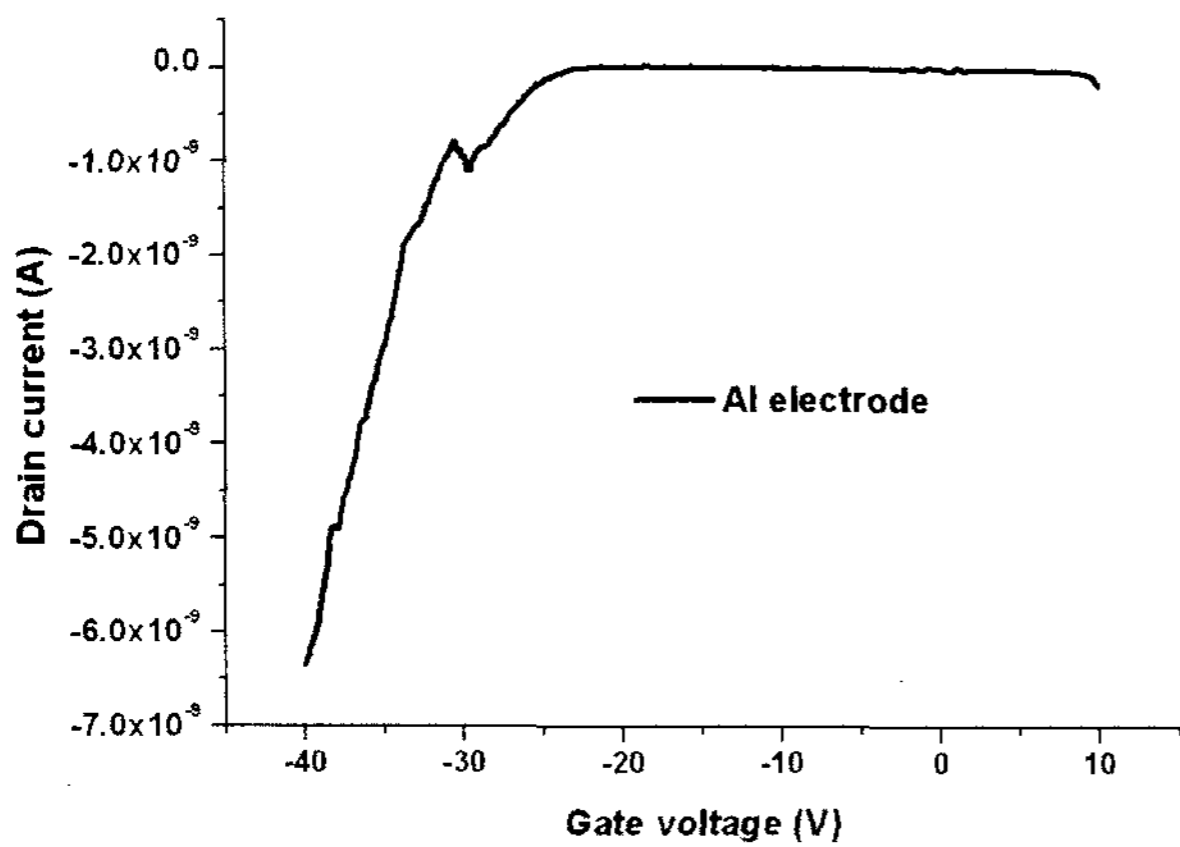


그림 9. Al을 전극으로 하는 OTFT의 V_G - I_D 특성곡선
Fig. 9. V_G - I_D curve of OTFT with Al electrode.

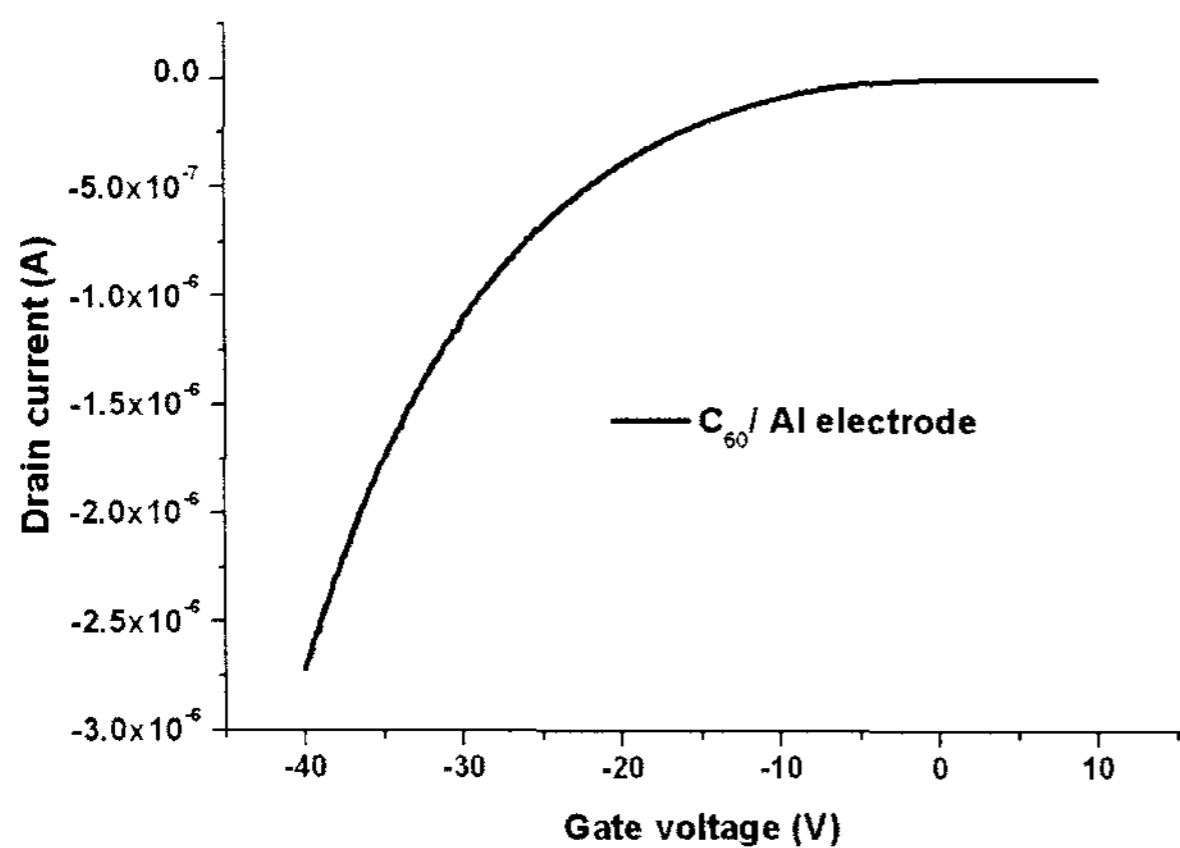


그림 10. $C_{60}(50\text{\AA})/Al$ 을 전극으로 하는 OTFT의 V_G - I_D 특성곡선

Fig. 10. V_G - I_D curve of OTFT with $C_{60}(50\text{\AA})/Al$ electrode.

입한 소자의 경우에는 C_{60} 과 Al간의 화학적 반응으로 형성되어진 interface dipole의 영향으로 Al의 일함수가 증가되어 홀 주입장벽이 낮아졌음을 알 수 있다. C_{60} 의 두께는 50Å에서 최적의 특성을 보였으며, 50Å의 두께를 넘으면 소자의 특성은 다소 감소되는 특성을 보였는

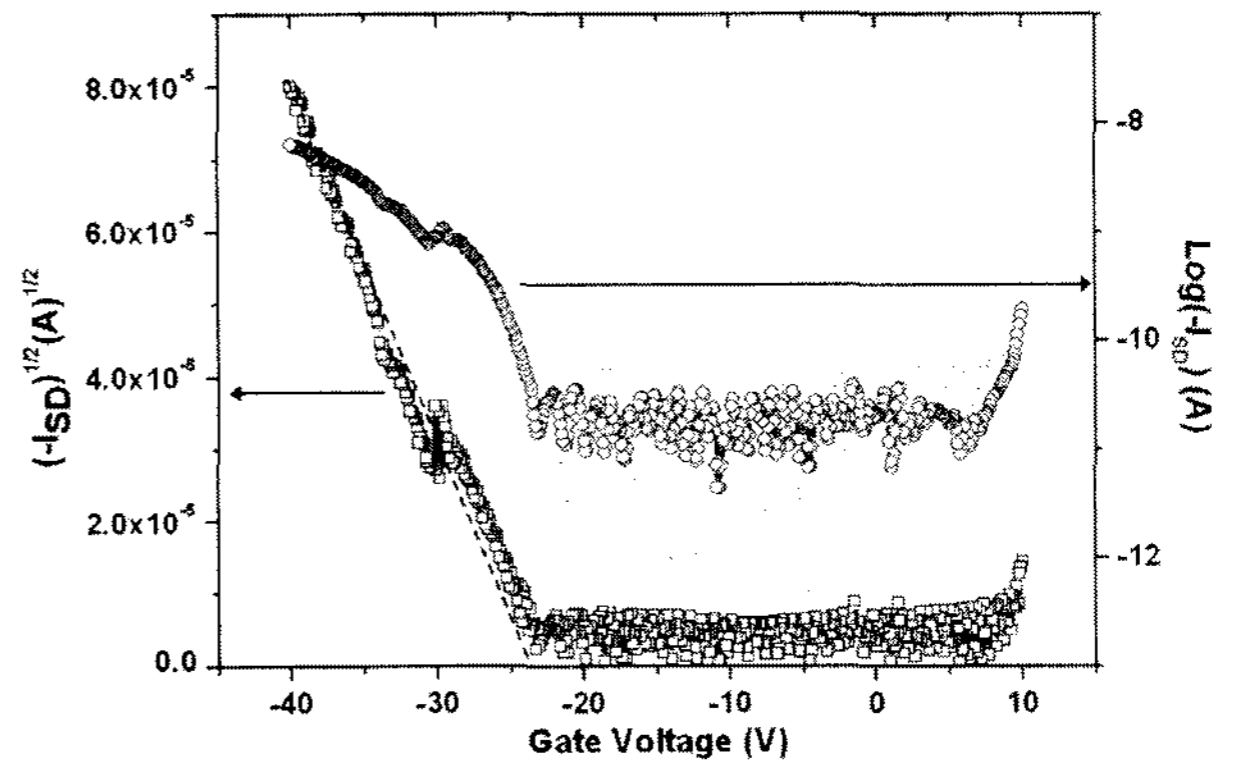


그림 11. Al을 전극으로 하는 OTFT의 V_G - I_D 특성곡선
Fig. 11. V_G - I_D transfer curves of OTFT with Al.

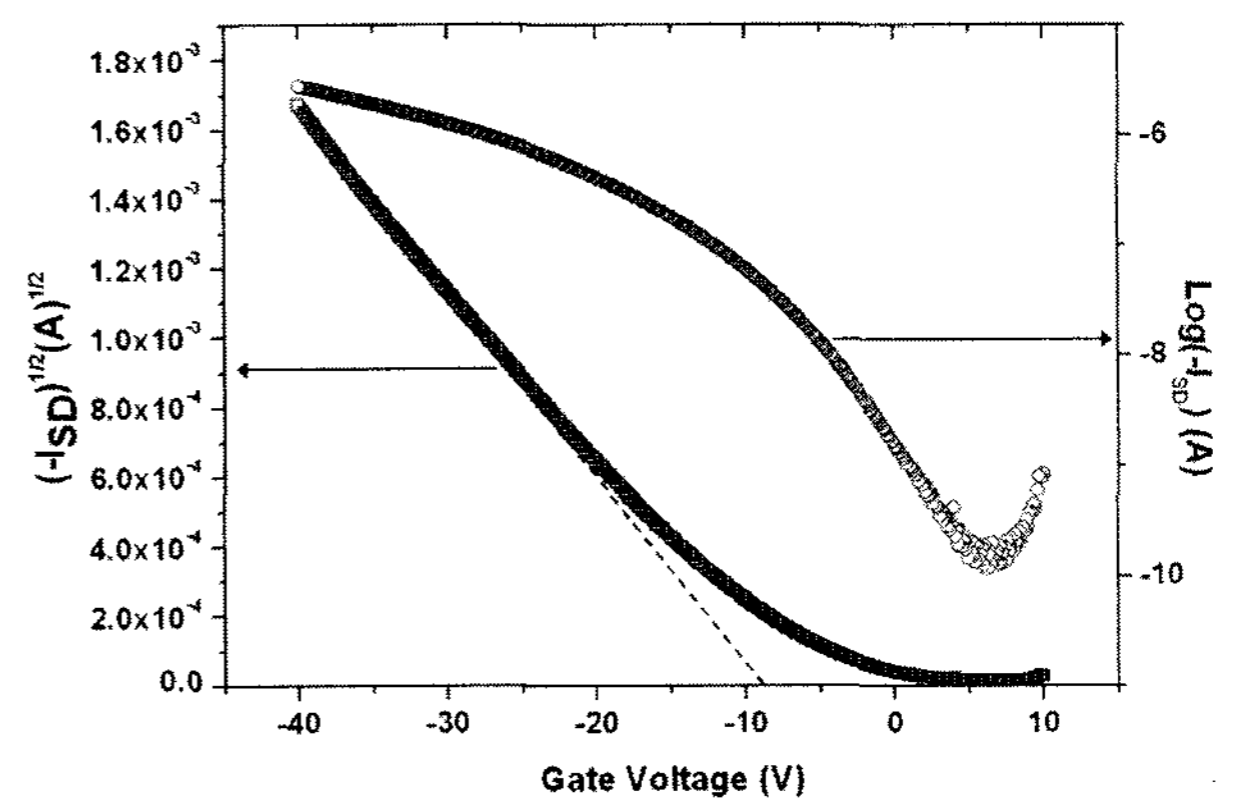


그림 12. $C_{60}(50\text{\AA})/Al$ 을 전극으로 하는 OTFT의 V_G - I_D 특성곡선

Fig. 12. V_G - I_D Transfer curves of OTFT with $C_{60}(50\text{\AA})/Al$.

표 1. C_{60} 의 두께에 따른 OTFT의 전기적 특성

Table 1. Electrical characteristics of OTFT with different thickness of C_{60} layer.

Thickness of C_{60} layer(Å)	Mobility ($\text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$)	I_{ON}/I_{OFF} ratio	Threshold voltage (V)
0	$\sim 5.1 \times 10^{-4}$	$\sim 10^3$	-23
10	0.01	5.63×10^4	-14
30	0.061	2.01×10^4	-8.9
50	0.165	1.40×10^4	-8
100	0.105	1.18×10^3	-8.4
200	0.086	6.52×10^2	-10.5

데 이는 두께가 두꺼워 질수록 터널링 확률이 줄어들기 때문이다.^[8]

그림 11과 12에서는 전류점멸비와 문턱전압특성을 보여주고 있다. Al만을 전극으로 사용한 OTFT의 경우 전류점멸비와 문턱전압은 $\sim 10^3$, -23V이며, $C_{60}(50\text{\AA})/Al$ 을 전극으로 적용한 소자의 경우 1.4×10^4 , -8V 특성을 보였으며, C_{60} 의 두께를 다르게 삽입하여 제작되어진 소자의 전기적 특성은 표1에 나타내었다. 이때 C_{60}

의 두께가 50Å에서 최적의 특성을 보였으며, 전체적으로 C₆₀/Al을 전극으로 사용한 소자는 Al을 단일전극으로 사용한 소자에 비해 크게 향상되었음을 알 수 있다. 이로써 Al과 같이 일함수가 낮은 전극을 OTFT에 적용할 수 있는 가능성을 보였다.

IV. 결 론

우리는 pentacene을 활성층으로 하는 OTFT제작에 있어 유기반도체층과 금속전극사이에 C₆₀ 홀 주입층을 적용하였다. Au-pentacene사이에 삽입하였을 경우 Contact resistance를 감소시킴으로 인해 홀 주입특성을 향상시켜 Au 단일전극을 적용한 소자에 비해 전하이동도와 문턱전압특성이 향상됨을 볼 수 있었다. 그리고 pentacene과 Al사이에 C₆₀을 삽입하여 pentacene을 기반으로 하는 OTFT의 전극으로 사용할 수 있음을 보였다. Al을 단일전극으로 OTFT제작시 pentacene과의 높은 홀 주입장벽으로 인해 채널이 형성되지 않거나 아주 낮은 특성을 보였으나 C₆₀을 홀 주입층으로 적용한 소자의 경우 전하이동도와 문턱전압특성이 크게 향상되었음을 보였다. 본 연구에 적용되어진 C₆₀의 이러한 특성은 향후 플렉서블 디스플레이의 적용에서 유기반도체와 전극간의 계면특성을 향상시킬 수 있을 것으로 기대되어 진다.

참 고 문 헌

- [1] C. D. Dimitrakopoulos and P. R. L. Malenfant, "Organic Thin Film Transistors for Large Area Electronics," *Adv. Mater.* Weinheim, Ger. Vol. 14, pp. 99, January 2002.
- [2] L. Zhou, S. Park, B. Bai, J. Sun, S. Wu, T.N. Jackson, S. Nelson, D. Freeman and Y. Hong, "Pentacene TFT Driven AM OLED Displays," *IEEE Electron Device Lett.* Vol. 26, pp. 640, September 2005.
- [3] 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 and 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, pp. 1088, February 2002.
- [4] F. C. Chen, L. Kung, T. Chen and Y. Lin, "Copper phthalocyanine buffer layer to enhance the charge injection in organic thin-film transistors," *Appl. Phys. Lett.* Vol 90, pp. 073504, February 2007.
- [5] W. Hu, Y. Zhao, C. Ma, J. Hou and S. Liu, "Improving the performance of the organic thin-film transistors with thin insulating lithium fluoride buffer layer," *Microelectronics Journal*, Vol 38, pp. 632, February 2007.
- [6] N. Hayashi, H. Ishii, Y. Ouchi and K. Seki, "Examination of band bending at buckminsterfullerene (C₆₀)/metal interfaces by the Kelvin probe method," *J. Appl. Phys.* Vol. 92, pp. 3784, July 2002.
- [7] A. Kahn, N. Kocha and W. Gao, "Electronic Structure and Electrical properties of interfaces between Metals and π -Conjugated Molecular Films," *J. Polymer Science*. Vol. 41, pp. 2529, May 2003.
- [8] S. T. Zhang, X. Ding, J. M. Zhao, H. Z. Shi, J. He, Z. H. Xiong, H. J. Ding, E. G. Obbard, Y. Q. Zhan, W. Huang and X. Y. Hou, "Role of hole playing in improving performance of organic light-emitting devices with an Al₂O₃ layer inserted at the cathode-organic interface," *A. Phys. Lett.*, Vol. 89, pp. 043502, July 2006.
- [9] D. J. Gundlach, L. Zhou, J. A. Nichols, T. N. Jackson, P.V. Necliudov and M. S. Shur, "An experimental study of contact effects in organic thin film transistors," *J. Appl. Phys.*, Vol. 100, pp. 024509, July 2006.
- [10] J. Y. Lee, "Efficient hole injection in organic light-emitting diodes using C₆₀ as a buffer layer for Al reflective anodes," *Appl. Phys. Lett.* Vol 88, pp. 073512, February 2006.
- [11] J. H. Seo, S. J. Kang, C. Y. Kim, S. W. Cho, K. -H. Yoo, C. N. Whang. "Energy level alignment between C₆₀ and Al using ultraviolet photoelectron spectroscopy," *A. Surface Science*, Vol. 252, pp. 8015, January 2006.

저 자 소 개



이 문 석(정회원)

1991년 포항공과대학교 전자전기공학과 학사 졸업.

1995년 포항공과대학교 전자전기공학과 석사 졸업.

1999년 포항공과대학교 전자전기공학과 박사졸업.

1996년 2월~1997년 1월 UW-Madison CXrL
Visiting Scholar

1999년 7월~2002년 10월 미국 LBNL. Post Doc./Staff Scientist

2002년12월~2004년 8월 삼성전자 반도체총괄책임연구원

2004년 9월~현재: 부산대학교 전자전기공학부 조교수.

<주관심분야 : 반도체 소자, 공정, OTFT>