

# 유기반도체 박막증착을 위한 선형증착원의 유체유동해석

## Analysis of Fluid Flow in the Linear Cell Source for Organic Semiconductor Thin Film Deposition

곽인철<sup>1</sup>, 양영수<sup>1,✉</sup>, 최범호<sup>2</sup>, 김영미<sup>2</sup>  
 In-Chul Kwak<sup>1</sup>, Young-Soo Yang<sup>1,✉</sup>, Bum Ho Choi<sup>2</sup> and Young Mi Kim<sup>2</sup>

1 전남대학교 기계공학과 (Department of Mechanical Engineering, Chonnam National University)  
 2 생산기술연구원 호남기술지원본부 나노기술집적센터 (National Center for Nanoprocess and Equipments, Honam Technology Service Division, Korea Institute of Industrial Technology)  
 ✉ Corresponding author: ysyang@chonnam.ac.kr, Tel: 062-530-1675

Manuscript received: 2009.3.25 / Revised: 2009.7.10 / Accepted: 2009.7.31

*This paper presents a study on fluid flow analysis of organic semiconductor thin film deposition process using the computational numerical method. In the production process, the thickness of deposited organic thin film depends on distribution of nozzle size in the linear cell system, so we analyze to decide the optimal nozzle system for uniform thickness of organic thin film. The results of deposited thickness of thin film by numerical analysis are in good agreement with those of the experimental measurements.*

Key Words: Organic Semiconductor (유기반도체), Linear Cell Source (선형증착원), Thin Film Deposition (박막증착), Numerical Analysis (수치해석)

### 기호설명

- $\rho$  = density
- $V$  = velocity
- $P$  = pressure
- $g$  = gravity
- $\mu$  = viscosity
- $t$  = time
- $T$  = temperature
- $C$  = specific heat
- $\bar{h}$  = average convection coefficient
- $q$  = heat generation
- $R$  = gas constant
- $dr$  = deposition rate
- $dt$  = deposition thickness

### 1. 서론

유기반도체 재료는 저분자와 고분자로 구분되며 이들은 모두 얇고, 가벼우며, 곡면에 제작 가능한 장점을 가진다. 고분자 유기반도체는 고분자를 용액에 녹여 사용하므로 spin coating, screen printing, inkjet printing 등 간단한 공정으로 소자제작이 가능하고 대면적 공정이 용이하고 낮은 가격, 높은 생산성 획득 가능하다.<sup>1,2</sup> 그러나 유기전자소자 제작에 가장 중요한 요소인 이동도가 낮아 고성능 전자소자에 사용 불가하다. 상대적으로 전하이동도가 높고, 양질의 박막을 형성할 수 있는 증착법을 활용하는 저분자 유기반도체가 차세대 유기전자소자의 가장 현실적 해결책으로 관심이 모아지고 있다. 저분자 유기반도체로 Pentacene, CuPC, C<sub>60</sub> 등이 사용된다.<sup>3,4</sup>

다양한 유기반도체 응용 분야 중 유기발광다이오드 이용 디스플레이 소자만 상용화가 시작되었고 다른 유기반도체 소자는 세계적으로 아직 상용화되지 않았다. 유기발광다이오드 디스플레이 상용화에 이어 유기전계효과 트랜지스터, 유기메모리, 유기박막 트랜지스터, 유기태양전지, flexible device 용 유기전극 등 차세대 유기전자소자 상용화가 뒤따를 것으로 전망된다.<sup>5</sup>

다양한 유기반도체 적용을 위한 원천기술 개발에 대응하기 위해 유기반도체 장비개발이 필수적으로 선행되어야 한다. 유기반도체 증착을 위하여 기존에 사용되고 있는 점 증착원(point cell source) 기술의 경우는 6 개의 점 증착원을 사용한다. 점 증착원의 경우는 공정시간이 4 분이상 소요되며, 넓은 면적 기판 공정에서 기판의 가운데 부분이 차지하는 현상이 발생한다. 또한 증착원에 분말을 한번 채운 상태에서 지속적으로 가동할 수 있는 시간이 짧다는 단점이 있다. 이러한 단점을 보완하고 양산라인에 적용되기 위해서는 증착기의 사용효율이 높아야 하고 대면적에 균일한 유기 박막을 증착할 수 있는 선형 증착원(linear cell source) 기술 개발이 필수적이다.

그러므로 본 연구에서는 선형증착원을 사용한 유기반도체 증착기 개발을 위하여 증착기 내부의 유체유동을 수치적인 방법으로 해석하였다. 해석 결과인 속도분포 데이터를 이용하여, 균일한 증착 두께를 얻기 위한 노즐설계에 사용하였다.

## 2. 유기반도체 증착기

유기반도체 증착기는 Fig. 1 과 같이 진공공기에서 유기물을 증발시켜 유리판에 증착시키는 공정이며, 증착된 유기물은 판 전체에서 균일한 두께가 요구된다. 증착기 내에 분말 상태로 채워진 유기물은 가열되며, 액화 후 기화 또는 승화되어 기체 상태로 된다. 기체 상태의 유기물은 증착원 내의 압력차이 및 기체의 밀도차에 의해 상승하게 된다. 이 상승된 기체상태의 유기물이 기판에 붙으며 증착이 이루어진다.

지금까지 사용된 증발기는 Fig. 2 와 같이 점 증착원(point cell source)으로 좁은 소면적의 유리판 증착에 사용되었으며, 대면적의 유리판 전체를 균일하게 증착하기에 적합하지 못하였다. 본 연구에서 새로이 고안한 증발기는 선형 증착원(linear cell source)으로 Fig. 3 과 같이 증발기에서 생성된 유기

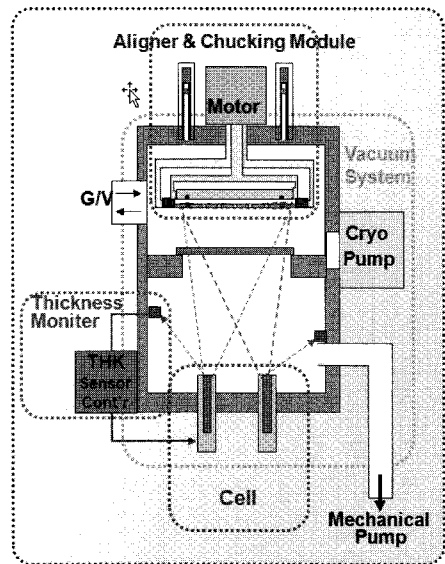
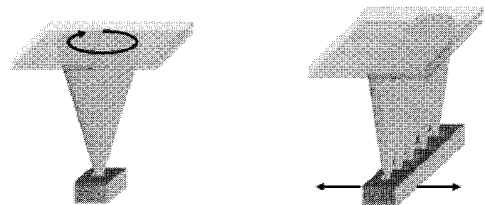


Fig. 1 Organic semiconductor thin film deposition system



Point cell source

Linear cell source

Fig. 2 Comparison of point cell with linear cell

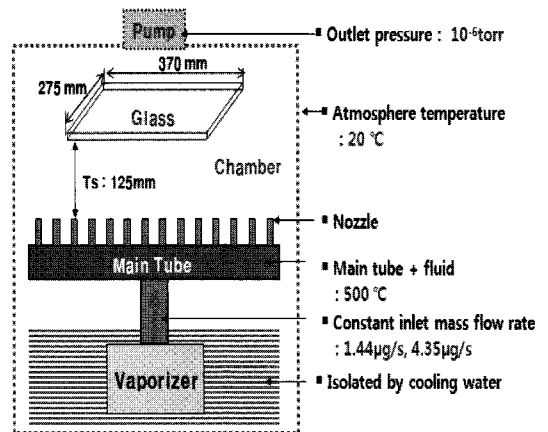


Fig. 3 Schematic diagram of linear cell source

물이 관을 통하여 이동하여 여러 개의 노즐에서 분사되는 방식이다. 여러 개의 노즐에서 분사된 유기물이 균일두께로 유리판에 증착하기 위해서는

용기 내에서 적절한 유동이 필요하다. 용기내의 유동을 제어하여 균일두께를 얻기 위하여 분사노즐 각각의 직경 치수를 변화시키면서 수치해석을 수행하여 최적의 노즐형상을 구하였다.

Fig. 3 은 수치해석에 적용된 해석영역 및 입력 조건을 나타내고 있다.

### 3. 진공용기내부 유동해석

#### 3.1 수치해석 과정

수치해석은 FVM(Finite volume Method) 방법으로 Fig. 4 의 순서도와 같이 계산이 진행된다. 해석 영역의 재료 및 유체의 물성치를 입력하고 Navier-Stokes Equation 과 연속방정식을 이용하여 u(x 방향 속도), v(y 방향 속도), w(z 방향 속도)를 계산 후에 에너지 방정식을 이용하여 온도를 계산한다.<sup>6</sup> 계산된 물성치를 계산 전과 비교하여 수렴할 때까지 반복하여 계산한다. 연속방정식, Navier-Stokes equation 은 속도가  $10^{-3}$  이하 에너지 방정식은 온도가  $10^{-6}$  이하의 오차까지 반복 계산한다. 증착공정은 시작 후 1 분 이내에 정상적인 증착이 진행되기 때문에 초기상태에서부터 시간변화에 따른 천이과정은 해석하지 않고, 정상상태(steady state)로 가정하고 해석하였다.

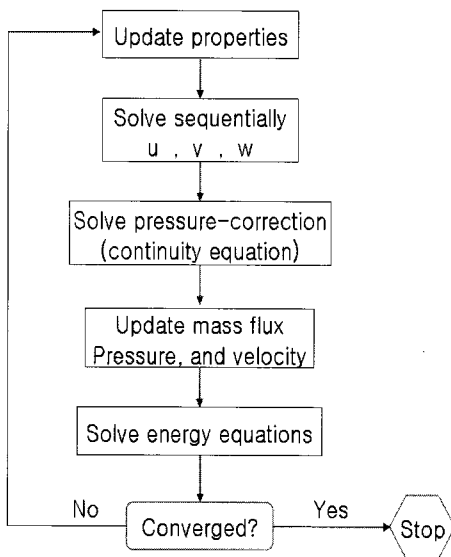


Fig. 4 Flow chart of fluid flow analysis

#### 3.1.1 연속체 유체유동

진공 시스템 내에서의 기체 분자의 운동은 상당히 복잡하게 나타난다. 사용하는 기체의 특성, 진공연결관의 크기, 모양 등에 따라 다르게 나타난다. 진공 상태의 유동에는 분자 유동 영역과 연속 유동 영역 그리고 전이 유동 영역이 존재한다. 이것은 기체의 평균자유행로와 진공 용기의 평균적인 크기의 관계인 Knusen Number 에 의해 분류한다. Knusen Number 가 1.0 이상일 때 분자 유동 영역이며, 0.01 이하일 때 연속유동이다. 중간영역은 전이운동을 한다.<sup>7</sup> 본 연구에 사용된 Knusen Number 는 0.0087 정도로 연속체로 가정한 연속방정식을 해석하여도 적절함을 알 수 있다.

#### 3.1.2 속도 및 압력계산

직교좌표계에서 유체유동의 지배방정식인 Navier-Stokes Equation 과 연속방정식을 이용하여 속도와 압력을 계산한다. 비압축성 유체 유동 시 각각의 수식은 (1), (2)로 나타낼 수 있으며, 각각 비압축성 Navier-stokes Equation 과 연속방정식이다.<sup>8</sup>

$$-\nabla P + \rho \vec{g} + \mu \nabla^2 \vec{V} = 0 \quad (1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{V}) = 0 \quad (2)$$

#### 3.1.3 온도계산

열전도 해석을 위한 지배방정식은 전도방정식, 대류방정식, 복사방정식이 있으며, 본 연구에서는 계산결과 복사열이 미미하게 나타나 복사열은 무시하였다. 지배방정식은 (3), (4)로 나타낼 수 있으며, 각각 Conduction Equation 과 Convection Equation 이다.<sup>9</sup>

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( k \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( k \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \dot{q} = 0 \quad (3)$$

$$q = \bar{h} \Delta T \quad (4)$$

### 3.2 수치해석

수치계산을 위하여 범용 S/W 인 FLUENT 를 사용하였다. FLUENT S/W 는 비교적 최근에 개발된 유체유동 해석 S/W 로 가장 많이 사용되고 있다. 해석을 수행하기 위해서는 해석영역을 정의하고 요소분할 작업을 한다.

### 3.2.1 요소분할

FLUENT S/W 내에 요소분할을 위한 전용 패키지 GAMBIT 이 포함되어 있으며, 요소분할은 Fig. 5 와 같이 3 차원 해석영역을 분할하였다.

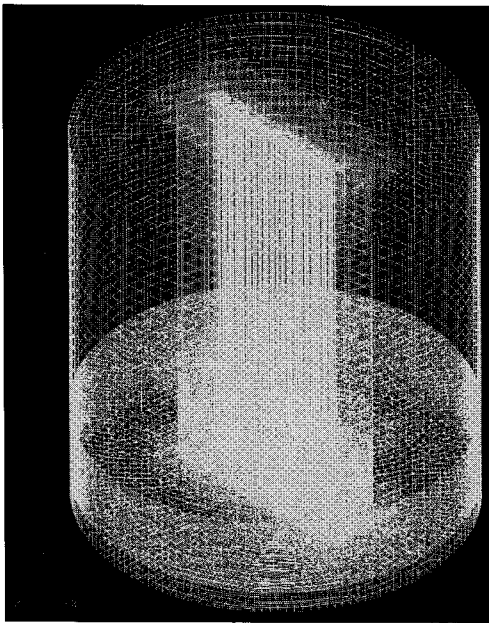


Fig. 5 Mesh generation in solution domain

요소형상은 6 면체를 주로 사용하였으며, 필요에 따라 5 면체 또는 4 면체 요소도 사용하였다. 해석 시 튜브관 내부의 유체부터 유동이 시작되며, 작은 오차라도 round off error 에 의해 해석결과에 큰 영향을 미치게 되므로 작은(fine)요소를 작게 분할하였다. 또한 노즐 주변에서 요소크기를 작게 분할하면 해석의 정확도를 높일 수 있다. 하지만 해석 컴퓨터의 성능에 따라 요소 개수의 한계가 있다. 본 연구에서 요소 분할은 컴퓨터의 메모리 최대 한계치로 분할하여 총 요소 수는 1,175,180 개이다.

### 3.2.2 입력 물성치 데이터

해석과 실험에 사용된 유기반도체는 Pentacene 재료를 사용하였다. 용기내부에 사용되는 유체는 상태방정식을 만족하는 이상기체로 가정하였다. 밀도는  $\rho = P/RT$  을 이용하여 온도계산 후 S/W 내에서 자체적으로 계산한다. 초기에 입력한 operation pressure 는  $10^4$  torr 로 일정하게 유지되며, 표 1 에 온도에 따른 비열, 열전도도, 점도의 물성치를 나

타내었다.<sup>10</sup>

Table 1 Thermal properties of fluid

Temperature (°C)	Specific heat (J/kg · °C)	Thermal conductivity (W/m · °C)	Viscosity (kg/m · s)
26.85	1.007	0.0263	$1.59 \times 10^{-5}$
126.85	1.014	0.0338	$2.64 \times 10^{-5}$
226.85	1.03	0.0407	$3.88 \times 10^{-5}$
326.85	1.051	0.046	$5.27 \times 10^{-5}$
426.85	1.075	0.0524	$6.81 \times 10^{-5}$
526.85	1.099	0.0573	$8.49 \times 10^{-5}$
626.85	1.121	0.062	$1.03 \times 10^{-5}$
726.85	1.141	0.0667	$1.22 \times 10^{-5}$

노즐부에 사용된 재료의 밀도는  $7900(\text{kg}/\text{m}^3)$  값을 입력하였으며, 표 2 에 열적 물성치를 나타내었다.

Table 2 Thermal properties of solid

Temperature (°C)	Specific heat (J/kg · °C)	Thermal conductivity (W/m · °C)
26.85	477	14.9
126.85	515	16.6
326.85	557	19.8
726.85	582	22.6
426.85	611	25.4

### 3.2.3 경계조건

Fig. 3 에서와 같이 튜브, 노즐 내의 유체 및 고체온도는  $500^\circ\text{C}$  로 일정하게 유지하였으며, 증발기에서 발생한 유기물의 양(inlet mass flow)은  $1.44\mu\text{g}/\text{s}$  와  $4.35\mu\text{g}/\text{s}$  로 일정한 값을 유지한다. 외부공기와 맞닿는 용기 외부벽면에서는 대류가 일어나며, 대류열전달 계수는  $0.0263(\text{W}/\text{m} \cdot ^\circ\text{C})$  을 사용하였으며, 대기 온도는  $20^\circ\text{C}$  이다. 용기 상단부에서는 진공펌프에 의하여 압력이  $10^{-6}$  torr 로 유지된다.

## 4. 해석결과

### 4.1 유리관 해석영역

Fig. 6 에서 증앙에 흰색 점선으로 표시된 유리관을 해석영역에 포함하여 해석한 결과를 관찰하면, 노즐에서 125mm 높이 지점에 유리평판이 있

으므로 125mm 지점의 수직상방향(y-방향)로의 속도 분포는 0 이 된다. 125mm 약간 아래 부분(120mm 주변) 지점의 속도 분포를 보면 수평방향(x-방향)으로의 속도가 크게 나타나 유기물입자가 평판에 증착이 되지 않고 평판을 비껴 날아간다. 그러나 실제공정에서는 유기물이 유리판을 만나면 모두 유리판에 증착되기 때문에 유체유동에서 유리판은 sink 역할을 하게 된다. 그러므로 본 연구에서는 유리판을 해석영역에서 제외시킨 다음, 유리판의 위치에서 수직방향으로 통과한 유기물은 모두 증착되었다고 가정하였다. 즉, 유리판이 제거된 상태에서 유기물의 속도를 계산하고, 이를 이용하여 증착두께를 산출하였다.

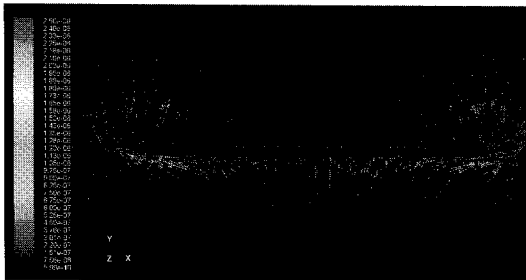


Fig. 6 Velocity distribution with glass plate in solution domain

**4.2 온도, 밀도, 압력 및 속도 분포**

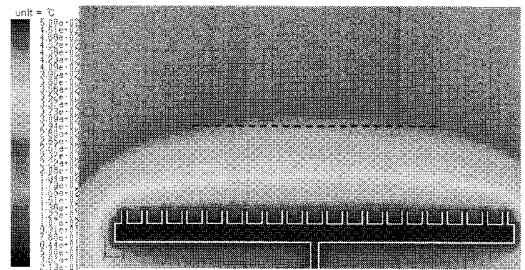
초기 장치설계에서 선형증착원의 노즐을 20 개로 하고, 증착효율 및 증발기를 고려하여 각각의 노즐 직경을 5mm 로 일정하게 하였으며, 증발기에서 노즐로 유기물이 이동되는 관(tube)의 직경을 초기 1/2inch 및 1inch 로 계산하였다. 관의 직경 변화 후 수행된 계산결과는 1inch 일때 증착률이 양호함을 나타내어 관의 직경을 1inch 로 결정하였다.

선형증착원의 20 개 노즐의 직경이 모두 5mm 이며 유기물 입력 질량유량을 4.35μg/s 로 하였을 때 용기내의 온도, 밀도, 압력 및 속도의 개략적인 분포형상이 Fig. 7 에 나타나 있다.

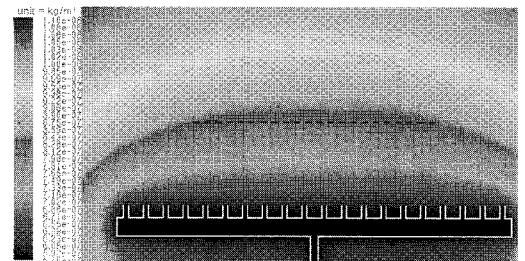
증발기에서 생성된 유기물이 관과 노즐을 통과하는 동안에는 관 주변에 발열장치를 가동하여 500℃가 유지되도록 한다. 그러므로 노즐에서 멀어질수록 온도가 저하됨을 알 수 있다. 밀도는 온도에 반비례하여 노즐에서 멀어짐에 따라 증가하고 있다.

용기상단에서의 진공압력은 10-6 torr 이므로 노즐에서 멀어질수록 압력이 하강하고 있다. 그러나

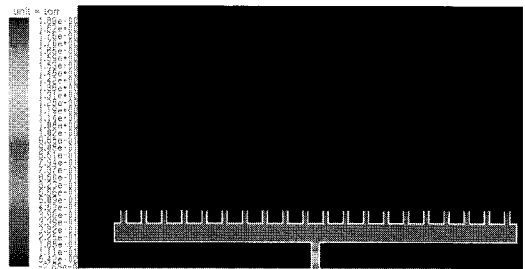
유기물이 노즐에서 분사되면서 속도가 급격히 변화하여 노즐분출구 주변에서 음압이 일부 나타나고 있다. 속도분포는 노즐에서 분사되어 유리판 방향으로 균일하게 진행됨을 확인할 수 있다.



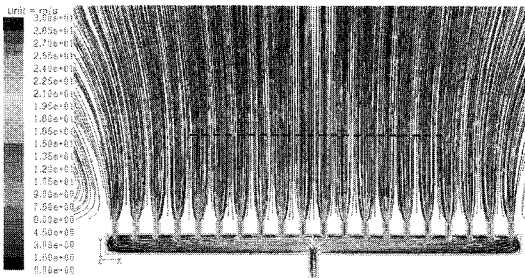
(a) Temperature distribution



(b) Density distribution



(c) Pressure distribution



(d) Velocity distribution

Fig. 7 Distributions of temperature, density, pressure and velocity in chamber

적층되는 양은 속도분포에서 질량유량을 계산하여 고체상태의 밀도로 나누어서 계산하였으며 적층률은 다음 식과 같다.

$$dr = \frac{\rho_{gas} V}{\rho_{solid}}$$

Fig. 8 에서 전체 20 개 노즐의 직경이 5mm 로 일정한 경우 유리판에서 적층되는 양은 중앙부분에서 많은 양이 적층되고 양단으로 갈수록 두께가 줄어들고 있다. 중앙부위와 양단에서 가능한 두께를 일치시키기 위해서는 중앙부위에서 양단으로 갈수록 노즐의 직경을 점차적으로 크게 해야 한다.

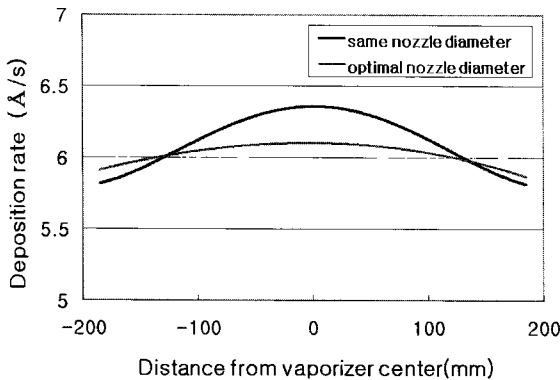


Fig. 8 Uniformity of deposition rate (inlet mass flow; 4.35µg/s, nozzle- to-plate distance; 125mm)

4.3 최적노즐 직경 및 실험결과

유리판의 중앙부위와 끝단에서 적층두께를 균일하게 하기 위하여 노즐의 직경을 변화시키면서 해석을 반복 수행하였다. 여러 가지 경우의 해석 결과 가장 균일하게 적층할 수 있는 노즐 직경의 분포를 얻을 수 있었으나, 노즐제작공정을 고려하여 소수점 2 번째(mm 단위)에서 반올림을 하여 최적의 노즐 직경 시스템을 결정하였다. 표 3 에 결정된 최적 노즐직경이 나타나 있으며, 양쪽이 대칭이므로 한쪽부분 노즐 10 개에 대해서만 표 시하였다. 최적의 노즐직경 분포시 4.35 µg/s 질량유량으로 해석한 증착률이 Fig. 8 에 나타나 있다.

Table 3 Optimized nozzle diameter

Distance from vaporizer to each nozzle (mm)	Nozzle diameter (mm)
15	5
45	5
75	5
105	5.1
135	5.1
165	5.1
195	5.1
225	5.2
255	5.3
285	5.6

1.44µg/s 질량유량으로 90 분 및 4.35µg/s 질량유량으로 3 분 증착 후 두께를 측정하여 이론 해석과 비교하였다. 해석결과를 이용한 증착두께는 다음 식과 같이 계산한다.

$$dt = \frac{\rho_{gas} V}{\rho_{solid}} t$$

이론 해석에 의한 노즐의 직경을 이용하여 시제품을 제작하였으며, 실제 실험에 사용된 시편과 공정은 다음과 같다. 증착률 및 시간은 이론해석과 동일하게 하였으며 개략적인 시편의 형상은 Fig. 9 와 같다. 중앙에서 20mm 간격으로 17 개의 위치에서 두께를 측정하였다.

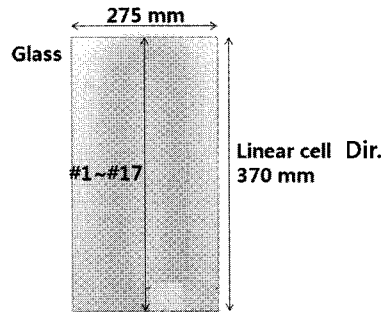


Fig. 9 Typical shape of experimental specimen to compare of analytical results

실험과 이론해석결과 Fig. 10 에 나타나있으며 비교적 잘 일치하고 있다. 두께가 약간씩 변화를

보이고 있으나 실용적인 적용 관점에서 허용 가능한 범위이기 때문에 원하는 균일 두께의 증착이 가능하였다.

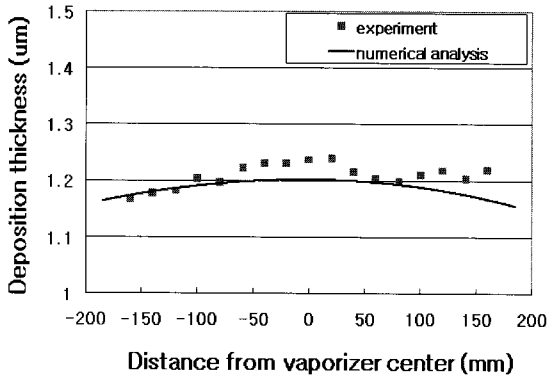


Fig. 10 Deposition thickness with optimal nozzle diameter (nozzle diameter; table 3, nozzle-to-plate distance; 125mm, inlet mass flow; 1.44  $\mu\text{g/s}$  (90min) + 4.35 $\mu\text{g/s}$ (3min))

### 5. 결론

Si 이후 세대를 대비할 수 있는 첨단 반도체 기술 중 가장 유망한 유기 반도체 제작을 위해서는 균일한 유기박막을 대면적에 증착할 수 있는 선형증착원의 개발이 필수적이다. 본 연구에서는 선형증착원을 사용한 반도체 장비 개발에서 균일 두께의 증착을 위한 최적 노즐직경 분포를 수치해석적 방법에 의하여 계산하였다. 균일한 유기박막을 얻기 위해서는 노즐의 크기가 중앙에서 가장자리로 갈수록 점점 커져야 함을 계산으로 확인하였고, 계산 결과는 실제 실험 결과와 일치함을 알 수 있었다. 또한 증착된 유기박막의 균일도는 박막형성의 일반적인 오차인  $\pm 5\%$  이내로서 계산 결과가 실제 장비에 적용 가능함을 확인하였다.

### 후 기

본 연구는 지식경제부가 지원하는 국가 반도체 연구개발사업인 “나노반도체장비 원천기술상용화사업”을 통해 개발된 결과임을 밝힙니다.

### 참고문헌

1. Sirringhaus, H., Kawase, T., Friend, R. H., Shimoda, T., Inbasekaran, M., Wu, W. and Woo, E. P., “High-Resolution Inkjet Printing of All-Polymer Transistor Circuits,” *Science*, Vol. 290, No. 5499, pp. 2123-2126, 2000.
2. Kim, Y. H., Park, S. K., Han, J. I., Moon, D. G. and Kim, W. K., “Solution-based Polymer TFT LCD on Plastic Substrates,” *SID Symposium Digest of Technical Papers*, Vol. 34, No. 1, pp. 996-999, 2003.
3. Lin, Y.-Y., Gundlach, D. J., Nelson, S. F. and Jackson, T. N., “Stacked pentacene layer organic thin-film transistors with improved characteristics,” *IEEE Electron Device Letters*, Vol. 18, No. 12, pp. 606-608, 1997.
4. Yan, H., Kagata, T. and Okuzaki, H., “Ambipolar pentacene/C60-based field-effect transistors with high hole and electron mobilities in ambient atmosphere,” *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 94, No. 2, Paper No. 023305, 2009.
5. Bao, Z. and Locklin, J., “Organic Field-Effect Transistors,” CRC Press, pp. 489-594, 2007.
6. Versteeg, H. K. and Malalasekera, W., “An introduction to computational fluid dynamics,” Longman Group Ltd., pp. 142-146, 1995.
7. An, I. S., “Vacuum physics and technology,” Hanyang University Press, pp. 35-51, 2003.
8. Cengel, Y. A. and Cimbala, J. M., “Fluid Mechanics,” McGraw Hill, pp. 426-431, 2006.
9. Incropera, F. P. and Dewitt, D. P., “Introduction to heat transfer 3rd edition,” John Wiley & Sons, pp. 50-59, 1998.
10. Cengel, Y. A. and Boles, M. A., “Thermodynamics 4th edition,” McGraw Hill, p. 821, 2002.