

## 유기박막 트랜지스터용 PVP (poly-4-vinylphenol) 게이트 절연막의 제작과 특성

백인재\* · 유재혁 · 임현승 · 장호정 · 박형호<sup>1</sup>  
단국대학교 전자공학과, <sup>1</sup>연세대학교 세라믹공학과

## Preparation and Properties of PVP (poly-4-vinylphenol) Gate Insulation Film For Organic Thin Film Transistor

In Jae Baek\*, Jae Hyouk Yoo, Hun Seung Lim,  
Ho Jung Chang and Hyung Ho Park<sup>1</sup>

Department of Electronics Engineering, Dankook University,  
<sup>1</sup>Department of Ceramic Engineering, Yonsei University.

**초 록:** 유기 박막트랜지스터 (OTFT)를 제작하기 위하여 게이트 절연막으로서 PVP 계통의 유기박막을 갖는 MIM(metal-insulator-metal) 구조의 유기 절연층 소자를 제작하였다. 유기 절연층의 형성은 ITO/Glass 기판위에 polyvinyl 계열의 PVP(poly-4-vinylphenol)를 용질로, PGMEA (propylene glycol monomethyl ether acetate)를 용매로 사용하여 co-polymer PVP를 제조하였다. 또한 열경화성 수지인 poly(melamine-co-formaldehyde)를 경화제로 사용하여 cross-linked PVP 절연막을 합성하였다. 유기 절연층의 전기적 특성은 co-polymer PVP 소자에 비해 cross-link 방식으로 제조된 소자에서 약 300 pA의 낮은 누설전류와 상대적으로 낮은 잡음전류의 특성을 나타내었다. 또한 cross-linked PVP 절연막에서 보다 양호한 표면형상 (거칠기)이 관찰되었으며 정전용량 값은 약 0.11~0.18 nF의 값을 나타내었다.

**Abstract :** The organic insulation devices with MIM (metal-insulator-metal) structures as PVP gate insulation films were prepared for the application of organic thin film transistors (OTFT). The co-polymer organic insulation films were synthesized by using PVP(poly-4-vinylphenol) as solute and PGMEA (propylene glycol monomethyl ether acetate) as solvent. The cross-linked PVP insulation films were also prepared by addition of poly(melamine-co-formaldehyde) as thermal hardener. The leakage current of the cross-linked PVP films was found to be about 300 pA with low current noise, and showed better property in electrical properties as compared with the co-polymer PVP insulation films. In addition, cross-linked PVP insulation films showed better surface morphology (roughness), showing about 0.11~0.18 nF in capacitance for all PVP film samples.

**Keywords:** cross-linked PVP, PVP insulator, organic insulator, gate insulation layer, Poly-4-vinylphenol

### 1. 서 론

유기박막 트랜지스터는 향후 평판디스플레이와 전계효과를 이용한 bio-센서, 스마트카드, 인식표

(identification tag) 등에 적용이 가능한 것으로 알려져 있다. 유기 박막 트랜지스터의 동작 특성에 영향을 미치는 하나의 요소로서 게이트 절연 특성을 들 수 있다. 최근에는 휨성(flexible) 디스플레이

\*Corresponding author  
E-mail: kotip@nate.com

의 구현을 위해 플라스틱(plastic) 기판상에 게이트 유기 절연층을 가지는 유기박막트랜지스터(organic thin film transistor, OTFT)를 제작하는 연구가 진행되고 있다<sup>1-2)</sup>. 유기 박막 트랜지스터에 사용하는 게이트 절연체로는 유기 활성층이 잘 배 열할 수 있도록 하기 위하여 자기배열을 하는 octadecyltrichlorosilane 이나 hexamethyldisilazane 물질을 사용한다<sup>3-4)</sup>. 기존의 SiO<sub>2</sub>는 1MV/cm 이상의 파괴전계 (break down field)와 10<sup>-12</sup> S/cm 이하의 훌륭한 절연특성을 가진다<sup>5-7)</sup>. 그러나 SiO<sub>2</sub>는 비정질 구조를 가지고 있으며, 유기물과 접촉 시 계면특성이 좋지 않은 단점이 있다. 유기물을 이용한 게이트 절연층으로는 PMMA (polymethyl methacrylate), Polyimid, PVA (polyvinyl alcohol), PVP (poly-4-vinylphenol) 등 여러 종류가 현재 연구 중이다<sup>8-9)</sup>. 고분자 게이트 절연층은 일반적으로 스펀코팅이나 self-assemble mono-layer 공정을 이용하여 형성할 수 있으나<sup>10)</sup>, 이런 방법들은 습식 공정이 포함되는 단점이 있다.

본 논문에서는 OTFT 소자에 응용하기 위해 PVP를 용질로, PGMEA (propylene glycol monomethyl ether acetate)를 용매로 사용하여 co-polymer 절연막을 형성하였다. 동시에 poly (melamine-co-formaldehyde)를 경화제로 사용하여 아세톤 (acetone)에 내성을 가진 cross-linked PVP의 유기 절연층을 합성하고 cross linking agent의 첨가에 따른 특성을 조사, 비교하고자 하였다. 이를 위해 PVP 절연층을 갖는 MIM (metal-insulator-metal) 구조의 소자를 제작하여 표면형상과 전기적 특성을 조사하였다.

## 2. 실험방법

2.5 × 2.5 (cm)크기의 ITO (indium tin oxide) 유리 (glass)를 기판으로 사용하고, 분말 형태의 PVP를 용질로, PGMEA를 용매로, poly(melamine-co-formaldehyde) 물질을 경화제로 사용하여 유기 절연막을 형성하였다. 본 실험에서 PVP는 경화제인 poly(melamine-co-formaldehyde)의 첨가 여부로 co-polymer PVP와 cross-linked PVP 절연막으로 구분하여 형성하였다. Cross-linked PVP는 아세톤과 같은 용매에 영향을 받지 않아서 식각 처리를 할 수 있다는 장점이 있다<sup>11)</sup>. Co-polymer PVP의 형성은 PVP와 PGMEA를 약 1:10 wt% 농도비로 상온에서 각각 혼합 하여 10시간 동안 교반 하였고, cross-linked PVP는 co-polymer PVP에 추가로 poly(melamine-co-formaldehyde)를 0.2~1.0wt% 농도로 혼합하여 10시간 동안 교반, 합성하였다. 합성된 유기 절연막의 절연 특성은 Fig. 1의 MIM 구조를 이용하여 측정하였다.

MIM 소자 제작과정으로 유리 기판위에 800Å 두께의 ITO 하부 전극을 patterning 하고, 스펀코팅 (spin coating) 방식으로 각각의 절연층을 약 3000Å 두께로 도포한 후, 100°C에서 10분간 건조 후 200°C에서 7분간 열처리(curing)를 실시하였다. 또한 진공 열증착 공정을 거쳐 약 1200Å 두께의 Al 상부전극을 형성하였다.

실험에 이용된 유기 절연층의 혼합과 도포 및 경화 조건을 Table 1에 정리하였다. 또한 유기 절연층의 형성에서 poly(melamine-co-formaldehyde)의 농도에 따라, 스펀 코팅 시에 두께에 변화가 있을

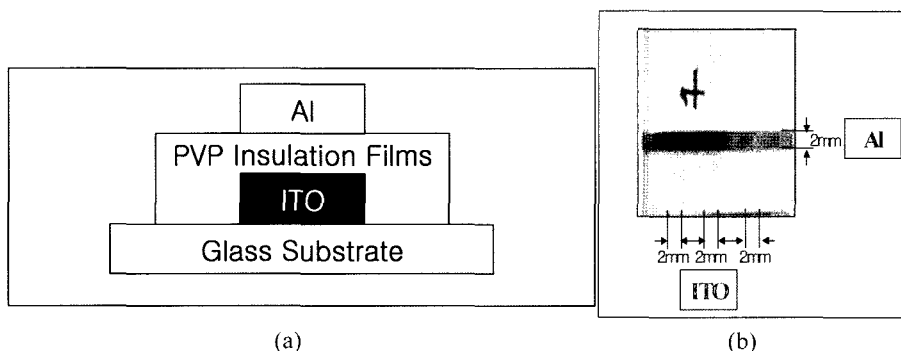


Fig. 1. (a) cross sectional and (b) top views of MIM structures of the insulating PVP organic films.

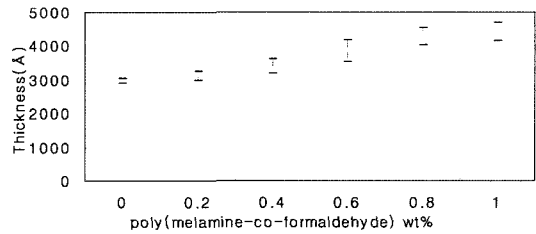
**Table 1.** Specifications of the organic insulating material processes

Processes	Specifications
Solutes/Solvent	PVP / PGMEA
PVP+PGMEA	1:10 (wt%)
Poly(melamine-co-formaldehyde)	0.2~1.0 wt% (Cross-linked PVP)
Spin coating	3000rpm, 30sec (Co-polymer) 3500rpm, 30sec (Cross-linked)
Curing	100°C, 10min +200°C, 7min

수 있어, 농도에 따른 두께의 변화를 관찰하였다. 두께는 알파 스텝( $\alpha$ -step) 두께 측정기를 이용하여 조사하였다. 또한 제작된 소자는 Semiconductor Analyzer (HP4145B)를 통하여 전류-전압 특성을 조사하였고, AFM (Atomic Force Microscope)을 이용하여 박막의 표면형상 및 거칠기를 관찰하였다.

### 3. 실험결과

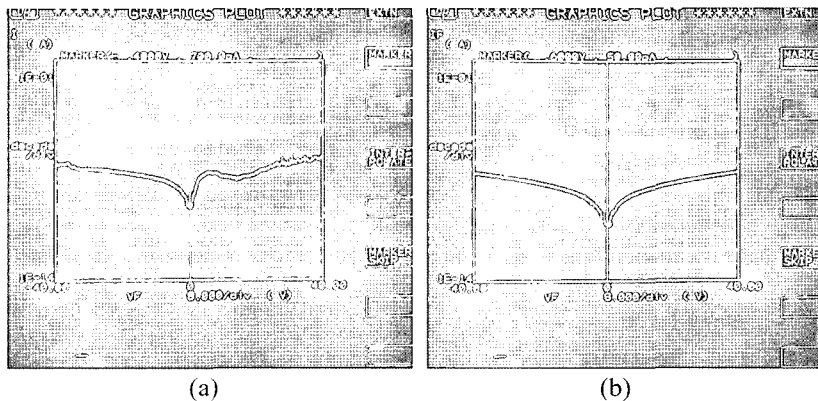
Fig. 2는 poly(melamine-co-formaldehyde) 경화제의 첨가 농도(wt%)에 따른 절연층 박막의 두께 변화를 보여주고 있다. 3000 rpm의 스핀 코팅 회전 속도에서 poly(melamine-co-formaldehyde)가 첨가되지 않은 co-polymer PVP 절연막 시료에서 박막 두께는 약 3000Å을 나타내었다. 그러나 poly(melamine-co-formaldehyde)의 농도를 0.2 wt%에



**Fig. 2.** Thickness of cross-linked PVP with various concentration of Poly(melamine-co-formaldehyde) material.

서 1.0 wt%로 변화시키에 따라 절연막의 두께는 평균 약 3200Å에서 약 4500Å으로 증가하는 경향을 나타내었다. 따라서 본 실험에서는 두 종류의 PVP 절연막 합성방법에 따른 절연 특성을 비교하기 위해 절연박막의 두께를 동일하게 하였으며, 이를 위해 스핀코터 (spin coater)의 회전속도를 조절하였다. 즉 최소한의 동일한 두께를 유지하기 위해 co-polymer PVP 절연막의 회전속도는 3000 rpm으로 유지하였고, 1.0 wt%의 poly(melamine-co-formaldehyde)가 첨가된 cross-linked PVP 막의 경우는 3500 rpm으로 스핀코터의 회전속도를 증가하여 같은 두께의 절연막을 형성하였다.

Fig. 3은 poly(melamine-co-formaldehyde)의 경화제 첨가농도 증가에 따른 전류-전압 특성을 보여주고 있다. 경화제 농도를 0.2 wt%에서 1.0 wt%로 증가함에 따라 누설전류는 약 700 pA에서 50 pA로 크게 낮아 지는 경향을 보여주었다. 이는 경화



**Fig. 3.** Current-voltage characteristics for cross-linked PVP insulation films with (a) 0.2 wt% and (b) 1.0 wt% poly(melamine-co-formaldehyde) materials.

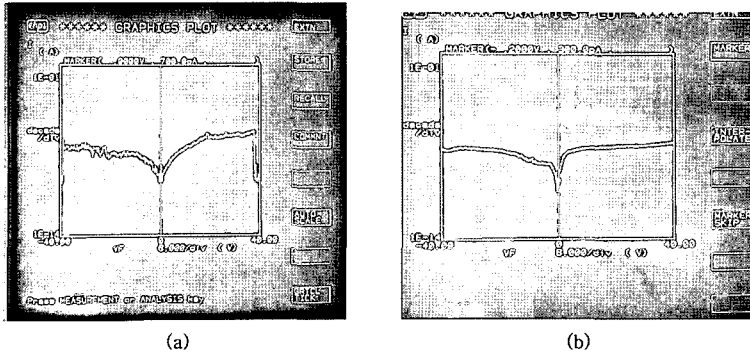


Fig. 4. Current-voltage characteristics for PVP insulation films in MIM devices; (a) co-polymer PVP and (b) cross-linked PVP with 1.0 wt% poly(melamine-co-formaldehyde) material.

제의 첨가에 따른 절연 박막의 두께 증가에 따른 것으로 판단된다.

약 3000Å의 동일한 두께로 형성한 cross-linked PVP와 co-polymer PVP 절연막의 전류-전압 특성을 Fig. 4(a)와 (b)에 각각 나타내었다. 누설전류는 co-polymer 박막에 비해 cross-linked PVP 절연 박막에서 훨씬 작게 나타나고 있다. 즉 cross-linked PVP 절연막의 경우 누설전류는 약 300 pA의 값을 나타내어 co-polymer 박막의 약 700 pA에 비해 절연 특성이 약 2배 이상 개선됨을 보여준다. 이와 같이 cross-linked PVP 절연막에서 우수한 누설전류 특성을 나타낸 것은 cross-linked 박막의 경우 표면 형상 및 계면 특성이 co-polymer 절연 박막에 비해 우수한 것으로 판단된다.

Fig 5는 약 3000Å 두께를 가지는 cross-linked PVP와 co-polymer로 형성한 PVP 절연막에 대한 AFM (atomic force microscopy) 표면 형상과 표면 거칠기를 나타내는 RMS (root mean square) 값을 보여주고 있다. 그림에서 알 수 있듯이 cross-linked PVP 절연막에서 RMS 값이 약 0.407 nm로 co-polymer 절연막의 RMS 값인 1.093 nm에 비해 작게 나타나고 있어 cross-linked 시료에서 보다 양호한 표면형상(거칠기)을 가지고 있음을 보여준다.

또한 유기 절연층의 잡음 전류는 표면 거칠기에 영향을 받으며, cross-linked 박막의 경우 보다 낮은 잡음 전류 특성을 나타내었다. 이는 cross-linked PVP 절연막에서 보다 양호한 표면형상과 경화제에 의한 박막의 거칠기 감소에 그 원인이 있는 것으로 판단된다.

일반적으로 유기 박막 트랜지스터에서 트랜지

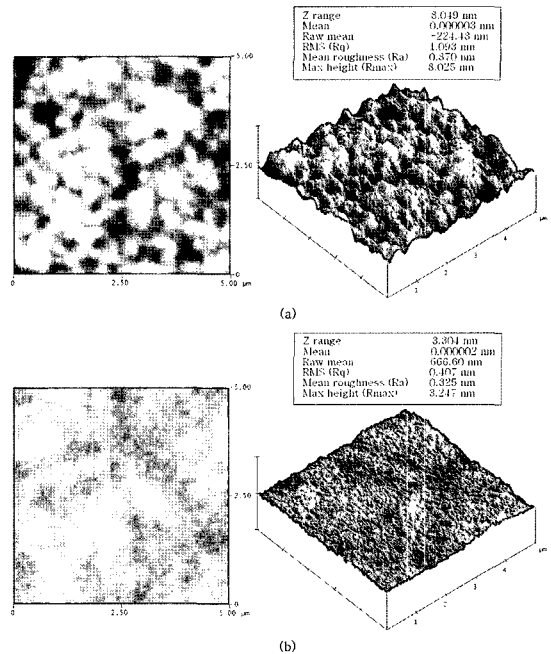
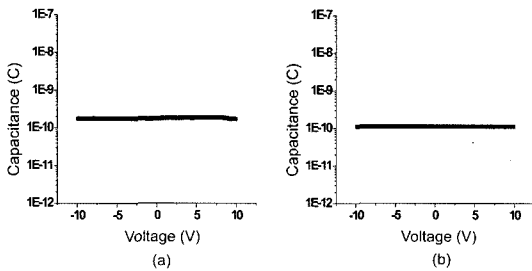


Fig. 5. AFM images of PVP insulation films in MIM devices; (a) co-polymer PVP and (b) cross-linked PVP with 1.0 wt% poly(melamine-co-formaldehyde) material.

스터의 성능 (이동도와 on/off 전류비)을 좌우하는 요소로서 트랜지스터 소자의 구조 (채널 폭, 길이)와 게이트 절연층의 정전용량 (capacitance,  $C_0$ ) 값을 들 수 있다<sup>12)</sup>. 즉, 절연막의 정전용량은 가능한 큰 값을 가지는 것이 바람직하다. 따라서 본 연구에서 두 종류의 PVP 절연막에 대한 정전용량 값을 측정하였다.



**Fig. 6.** Capacitance-voltage characteristics for PVP insulation films in MIM devices; (a) co-polymer PVP and (b) cross-linked PVP with 1.0 wt% poly(melamine-co-formaldehyde) material.

Fig. 6에는 co-polymer PVP와 cross-linked PVP 절연막에 대한 전압인가에 따른 정전용량 값 (Capacitance-Voltage)의 변화를 보여주고 있다. PVP를 용질로, PGMEA를 용매로 사용한 co-polymer 절연체와 poly(melamine-co-formaldehyde) 물질을 경화제로 첨가한 cross-linked PVP 절연막의 경우 모두 정전용량은 약 0.11~0.18 nF 범위의 유사한 값을 나타내었다. 이러한 결과로부터 경화제 첨가가 PVP 절연막의 정전용량 특성에는 크게 영향을 미치지 않았다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 유기 박막트랜지스터용 PVP 게이트 절연막으로서 co-polymer 방식과 cross-linked 방식에 의해 ITO/Glass 기판위에 MIM (metal insulator metal)구조의 소자를 형성하고 그들 소자에 대해 표면형상 및 전기적 특성을 조사하였다. PVP 유기 절연층의 형성을 위해 PGMEA (propylene glycol monomethyl ether acetate)를 용매로 사용하였으며 poly(melamine-co-formaldehyde)를 경화제로 사용하여 유기 절연층의 cross-link를 시도하였다. 약 3000Å의 동일한 두께에서 co-polymer PVP에 비해 cross-linked PVP 절연 특성이 보다 우수한 경향을 보였으며 cross-link 방식으로 제조된 소자에서 약 300 pA의 낮은 누설전류와 상대적으로 낮은 잡음전류의 특성을 나타내었다. 또한 AFM

측정결과 cross-linked PVP 절연막에서 보다 양호한 표면형상과 거칠기를 보여주었다. 모든 시료에서 정전용량은 약 0.11~0.18 nF 범위의 값을 나타내었다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단의 특정목적기초 프로그램(과제번호 : R01-2000-000-00244-0)에 의해 수행된 연구의 일부이며 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. K. Kudo, M. Yamashina, T. Morizumi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 23, 130 (1984).
2. A. Tsumura, H. Koezuka, Y. Ando, *Appl. Phys. Lett.*, 49, 1210 (1986).
3. Y. S. Yang, S. H. Kim, J. I. Lee, H. Y. Chu, L. M. Do, H. Lee, J. Oh, and T. Zyung, *Appl. Phys. Lett.*, 80, 1595 (2002).
4. Y. Y. Lin, D. J. Gundlach, S. F. Nelson, and T. N. Jackson, *IEEE Trans. Electron Devices*, 44, 1325 (1997).
5. E. P. Gusev, H.-C. Lu, E. L. Garfunkel, T. Gustafsson, and M. L. Green, *IBM J. RES. DEVELOP.*, 43, 265 (1999).
6. H. Klauk, D. J. Gundlach, J. A. Nicholes, C. D. Sheraw, M. Bonse, and T. N. Jackson, *Solid State Technol.*, 43, 63(2000).
7. G. Horowitz, X. Peng, D. Fichou, and F. Garnier, *J. Appl. Phys.*, 67, 528 (1990).
8. H. Klauk, D. J. Gundlach, J. A. Nicoles, C. D. Sheraw, M. Bonse and T. N. Jackson, *Solid State Technol.*, 43, 63 (2000).
9. H. Klauk, D. J. Gundlach, J. A. Nicoles, T. N. Jackson, *IEEE Trans. Electron Devices*, 46, 1258 (1999).
10. J. Collet and D. Vuillaume, *Appl. Phys. Lett.*, 73, 2683 (1998).
11. H. S. Byun, G. G. Kim, Y. K. Kim, H. K. Han, C. K. Song, 한국통신학회, 대한전자공학회 추계합동 학술대회집, 44 (2004).
12. G. K. Chang, D. G. Seo, H. J. Chang, S. K. Lim, M. H. Oh and S. K. Kim, *Proc. of Korea-Japan Joint Workshop on Advanced Semiconductor Process and Equipments*, 168 (2005).