

기술특집

전유기트랜지스터용 유기절연막의 현황 및 향후 연구방향

안 택¹, 표승문², 이미혜¹(¹한국화학연구원, 고분자나노소재연구팀, ²건국대학교 화학과)

I. 서 론

유기박막트랜지스터(OTFT)에 관한 연구는 1964년 a-copper phthalocyanine을 유기반도체로 적용함으로써 시작되었으며, 1983년 Ebisawa 등은 폴리아세틸렌을 소자에 적용하여 $7 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 의 이동도 특성을 보고하였다. 최근 유기트랜지스터의 필요성이 크게 대두됨에 따라 유기반도체와 유기절연막의 개발을 중심으로 많은 연구가 진행되고 있다^[1-3]. 유기화합물로부터 제조되는 반도체 소자는 용액 상 코팅 혹은 인쇄 등의 저가공정이 가능하기 때문에 기존의 무기반도체로부터 제작된 소자에 비교하여 경제성면에서 유리하며, 동시에 소자에 유연성을 부여할 수 있는 장점에 의해 플렉시블 디스플레이 소자의 실현에 핵심적인 역할을 할 것으로 예상된다. 그러나 현 수준의 OTFT 소자는 전하이동도가 낮아 빠른 이동도를 필요로 하는 디스플레이용 소자 공정에는 적용이 어려우며, 스마트 카드 혹은 저가 구동회로와 같은 정보처리용 소자에의 활용이 우선 기대된다. 현재 대표적인 유기반도체인 펜타센과 무기절연막으로 만들어진 OTFT의 경우 전계효과 이동도가 $\sim 5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, ON/OFF 점멸비가 10^7 정도로 a-Si TFT에 근접하는 결과들이 보고되고 있지만, 무기절연막이 아닌 유기절연막을 사용한 전유기 OTFT의 성능은 기존 a-Si TFT에 미치지는 못하고 있는 실정이다. 유기반도체 박막 자체의 전도도 및 박막계면에서의 전하이동특성 불량 등이 대표적인 원인으로 볼 수 있다. 특히, 유기 반도체박막 계면에서의 전하이동특성은 유기절연막의 벌크 및 표면 특성과 아주 밀접한 관계를 맺고 있어 유기반도체 뿐만 아니라 유기절연막의 연구개발이 전유기 OTFT의 실현에 관건이 되고 있다.

본 총설에서는 전유기 OTFT의 핵심소재인 TFT의 구동원리를 간단히 설명하고, 이에 적용될 수 있는 유기절연막의 종류와 기본적인 요구특성을 소개하고자 한다. 동시에 국내·외 OTFT 연구동향을 중심으로 다양하게 시도되고 있는 유기절연막의 개발 및 향후 연구방향을 예측해보고자 한다.

II. TFT의 구동원리

OTFT는 게이트(gate), 드레인(drain) 및 소스(source) 그리고 유기 반도체를 활성층으로 가진 소자이다. TFT의 동작 원리는 MOSFET(Metal Oxide Semiconductor FET)과 매우 유사하지만, MOSFET은 게이트 전극에 인가된 전압에 의해 반도체 층과 게이트 절연막 계면에 소수 캐리어(carrier) 채널이 반전(inversion)되어 형성된 상태에서 동작하지만, TFT는 활성층 계면에 다수 캐리어가 축적(accumulation)되는 상태에서 동작한다는 점에 차이가 있다. 기본적인 동작원리는 다음과 같다. 소스와 드레인, 게이트 모두에 전압을 인가하지 않으면 활성층인 유기반도체 내의 전하들은 모두 반도체내에 분포되어 있게 된다. 여기에 소스와 드레인에 낮은 전압을 인가하게 되면 인가전압에 비례하는 전류가 흐르게 되고, 게이트에 양(n-type 활성층) 또는 음(p-type 활성층)의 전압을 인가하면 활성층내의 전하들이 활성층쪽 계면에 축적되기 시작하고 일정 이상의 전압이 게이트에 인가되면 채널이라 불리는 축적층이 형성되고 이를 통하여 전류가 흐르게 된다. 이때 채널형성에 필요한 최소의 V_{gs} 을 문턱전압(threshold voltage : V_T)라 한다. TFT의 동작영역은 크게 선형 영역(linear region)과 포화 영역(saturation region)의 두 영역으로 구분된다. V_{gs} 를 증가시켜주면, V_{gs} 가 V_T 와 같을 때 채널이 형성되고 이때 흐르는 전류는 무시할 만큼 작다. V_{gs} 가 V_T 를 넘어선 만큼을 유효전압($V_{gs} - V_T$)이라고 하면 형성된 채널의 깊이(inversion layer)는 이 유효전압에 비례하고 채널의 깊이가 커지면 채널에 있는 자유전자가 많아지게 되고 이에 비례하여 전류는 증가한다. 즉, I_{ds} 는 유효전압($V_{gs} - V_T$)에 비례하게 된다. 이때의 영역을 선형영역(linear region)이라고 하고 이 영역에서의 전류는 다음 관계를 따른다.

$$I_{ds} = \frac{WC_i\mu}{L} \left(V_{gs} - V_T - \frac{V_{ds}}{2} \right) V_{ds}$$

(W : channel width, L : channel length, μ : charge mobility, V_{gs} : source-gate voltage, C_i : insulator capacitance per unit area, V_T : threshold voltage)

이 영역에서의 전계전하 이동도는 다음 식으로부터 구할 수 있다.

$$g_m = \frac{\partial I_{ds}}{\partial V_{gs}} \Big| V_{ds} = const = \frac{WC_i}{L} \mu V_{ds}$$

$V_{gs} (> V_T)$ 을 고정하고 V_{ds} 을 계속 증가시키면, V_{ds} 만큼의 전압감소가 소오스와 드레인 사이의 채널에서 일어나며 소오스에서의 전압은 변하지 않으나, 드레인 전압은 $V_{gs} - V_{ds}$ 로 V_{ds} 가 증가함에 따라 드레인 쪽의 전압이 감소하게 된다. 채널깊이는 이 전압에 비례하므로 채널의 모양은 드레인 쪽으로 점점 가늘어지는 형태(tapered form)가 된다. V_{ds} 가 증가하면 드레인방향의 채널 모양이 감소되어서 채널의 저항이 증가한다. 저항에 변화가 생기므로, $I_{ds} - V_{ds}$ 그래프가 직선에서 벗어난다. 드레인 말단전압 $V_{gs} - V_{ds}$ 가 V_T 와 같아지게 되면 채널깊이(channel depth)가 0에 가까워지고, 이때를 채널이 핀치오프(pinch off)되었다고 한다. V_{ds} 가 $V_{gs} - V_T$ 보다 커지면 channel의 모양에 변화는 거의 없게 되어 흐르는 전류가 일정해진다. 이때의 영역은 포화영역(saturation region)이라고 한다. 포화영역에서의 전류는 다음의 식으로 표현된다.

$$I_{ds} = \frac{W\mu C_i}{2L} (V_{gs} - V_T)^2$$

위 식을 이용하여 포화 영역에서의 전계효과 이동도(charge mobility : μ)를 구할 수 있다.

III. 유기 박막 트랜지스터(organic thin film transistor, OTFT)의 필요성

21세기 정보통신산업의 발달에 따라서 정보전달 매체(Man-Machine Interface)인 디스플레이 분야는 장소, 시간에 구애됨이 없이 가볍고, 저전력의 휴대가 간편하면서도 화질이 우수한 초경량, 초박막의 디스플레이가 절실히 요구되며 향후 종이처럼 가볍고 얇은 유연한 디스플레이로 발전할 것으로 예상되고 있다. 따라서, 기존의 유리 기판 대신 유연하고 충격에 강할 뿐만 아니라 경량·박막형인 플라스틱 디스플레이가 요구되고 있으며 기존의 무기 소재를 대체할 수 있는 유기 소재의 도입이 크게 요구되고 있다.

즉, 제작 공정이 간단하고 비용이 저렴하며 충격에 의해 깨지지 않고 구부리거나 접을 수 있는 전자 회로 기판이 미래의 산업에 필수적인 요소가 될 것으로 예상되고 있으며, 이러한 요구를 충족시킬 수 있는 전유기트랜지스터(all organic thin film transistor, OTFT)의 개발은 매우 중요한 연구 분야로 대두되고 있다. 그러나 아직까지도 OTFT는 유기 반도체의 특성상 전하 이동도가 낮아 실리콘(Si)이나 게르마늄(Ge)등이 쓰이는 빠른 속도를 필요로 하는 소자에는 사용될 수 없으나 넓은 면적의 소자, 낮은 공정온도, 혹은 유연성이 요구되는 경우에 적용이 가능하다. OTFT에 사용되는 유기물 반도체는 증착, 스플 코팅 또는

잉크젯 프린팅 방법으로 성막이 가능하고, 상온 및 저온(100°C 이하) 공정이 용이하므로 OTFT를 이용한 플라스틱 기반의 유기 전자 회로의 제작이 가능하다.

OTFT에 사용되는 재료는 전하를 잘 이동시키는 유기반도체, 높은 절연성과 유전상수를 가져야 하는 유기절연재, 유기전극 및 높은 열안정성이 요구되는 플라스틱 기판 등이 있으며, 현재까지도 해결해야 할 기술적인 문제점들을 내포하고 있다. 기존의 OTFT용 절연재로서는 poly(vinylphenol) (PVP)^[4-6], poly(methyl-methacrylate) (PMMA)^[7], polyvinylalcohol (PVA)^[8] 그리고 benzocyclobutene (BCB)^[9] 등을 사용한 경우가 보고되어 있지만, 현재까지 소자에서 요구되는 특성을 모두 만족시킬만한 절연소재는 개발되어 있지 않은 실정으로, 고성능 고효율의 OTFT의 구현을 위해서는 고성능 유기절연재의 연구·개발이 필수적으로 요구되고 있다.

IV. 유기절연재의 요구 특성

게이트절연재는 유기반도체 재료와 함께 OTFT 소자의 성능을 좌우하는 핵심 소재이다. OTFT에 있어서 반도체 채널의 캐리어(carrier)의 밀도 및 전기적 특성은 게이트 절연재의 축전용량(capacitance)과 밀접한 관계를 가지고 있다. 즉, OTFT의 드레인 전류는 유전체의 유전상수와 선형비례하며, 편Hall의 유무에 크게 영향을 받는다. 게이트 절연재는 소자의 off-current(gate leakage current), threshold voltage (fixed and trapped charge), subthreshold slope(interface charges), transfer output hysteresis (trapped charges), conduction mechanism (trap-assisted hopping) 등에 영향을 미친다. 예를 들어 낮은 누설전류를 유지하기 위해 유기절연재의 밴드갭은 충분히 커야 하며, 열역학적인 안정성 및 계면에서의 결합부분이 극소화 되어야 한다. 동시에 낮은 표면 조도 및 높은 절연파괴전압 등의 안정한 전기적 특성이 요구된다. 높은 유전상수는 저전압구동을 위해 요구되는 주요 특성이나, 동시에 이는 절연재와 반도체 사이의 계면에 높은 극성도를 초래하여 캐리어의 편중(carrier localization)에 의한 이동도의 저하를 초래하기도하여 조절이 요구된다. 현재 사용되는 대부분의 절연재는 SiO_2 , SiN_x , $\text{TaO}_x/\text{SiN}_x$, Al_2O_3 , Ta_2O_5 , BZT(barium zirconate titanate) 및 BST(barium strontium titanate) 등으로 대표되는 무기절연재로서 APCVD(atmospheric pressure chemical vapor deposition) 혹은 PECVD(plasma enhanced chemical vapor deposition) 법 등과 같은 고온 진공 증착에 의해 박막이 형성되며, 단차피복성(step coverage) 및 공정의 복잡성에 있어서 많은 문제점을 안고 있다. 반면 유기절연재는 용액 코팅 등의 방법으로 손쉽게 제작할 수 있는 공정상의 장점을 가지고 있기 때문에 기존 무기 절연재 적용 시 필요한 진공 설비 등 고가의 장치비를 절약할 수 있다. 뿐만 아니라, 유기절연재는 평탄화도 및 화학구조 도입에 의한 특성의 제어가 용이

하기 때문에 무기절연재를 대체할 수 있는 신규 소재로서 많은 연구 개발이 이루어지고 있다. OTFT의 유기절연재(gate-insulator)에 요구되는 특성으로는 문턱전압을 낮추고, 효율을 좋게 하기 위한 높은 유전상수(4.0 이상)가 대표적이며, 공정상에 노출되는 화학물질에 대한 내화학성, 회로 구동시 발생되는 열에 견디는 내열성, 패턴화 공정 단순화를 위한 감광성, 유기반도체와의 접착성 및 고른 표면 형상 등이 동시에 요구된다.

즉, 유기 절연재의 대표적인 요구 특성에는 고유전율, 평탄화도, 내화학성 및 열 안정성, 그리고 접착력과 감광특성 등이 있으며, 각각의 특성에 대해 정리하면 다음과 같다.

1. 유전율(dielectric constant)

1) 유전율이란?

유전율은 콘덴서의 두 전극 사이에 유전체를 넣었을 경우와 넣지 않았을 경우(엄밀히는 진공일 경우)의 전기용량(電氣容量)의 비를 말한다. 전기 용량은 전압이 걸릴 때 생기는 전하를 저장할 수 있는 두 도체 사이의 능력으로 정의 될 수 있다. 만약 진공에서 두 평행한 도체 사이에서의 전기용량은 다음과 같이 정의된다.

$$C_0 = \frac{Q}{V} = \frac{\epsilon_0 A}{d}$$

ϵ_0 : 진공에서의 유전율,

A : 도체판 면적,

d : 두 도체판 사이의 거리

2) 고분자의 분자구조와 유전율과의 관계

TFT 소자의 드레인 전류(drain current)는 절연재의 유전율에 비례하여 증가하기 때문에 절연재의 유전상수를 높이는 것은 TFT의 성능 향상에 큰 영향을 미치게 된다. 잘 알려진 바와 같이 소재의 유전상수에 영향을 주는 요인으로는 화학구조(chemical structure), 조성(composition), 결정성(crystallinity) 및 배향(orientation) 등이 있으며, 질소(nitrogen), 산소(oxygen), 황(sulfur) 등과 같은 이종 원자(hetero atom)을 함유한 극성기의 존재는 유전상수를 크게 증가시키나, 이들이 대칭적인 구조로 도입된 경우에는 dipole moment vector의 상쇄로 인해 유전상수가 낮아진다. 또한, 극성기가 측쇄에 도입된 경우 유전상수를 개선시키는 효과가 크다.

불소 원자(fluorine atom)와 같이 작고, 전기음성도(electro-negativity)가 큰 원자는 유전상수의 증가에 기여하는 효과가 적으나, 반면 이들이 비대칭적 구조로 도입된 경우는 이론적으로 설명할 수 없을 정도로 유전상수의 증가를 보이기도 한다.

뿐만 아니라, 유전상수는 불순물(impurity), 충진제(filler), 첨가제(plasticizer) 및 수분(moisture) 등에 영향을 받으며, 분자의 이동도(mobility)에 따라 크게 변화하기 때문에 동일 분자 구조라 하더라도 분자량의 감소에 따라 높은 값을 나타낸다.

2. 내열성

OTFT 소자용 유기절연재는 전도성 박막(indium tin oxide, ITO)의 증착, 배향막 도포 및 경화 등의 여러 단계의 열처리 공정을 거치는데 이에 견디기 위해서는 적어도 200°C 이상의 내열온도가 요구되기 때문에 폴리이미드 수지와 같은 내열 수지의 적용이 요구된다.

3. 내용제성

OTFT 소자용 유기절연재는 절연박막을 형성한 이후, 이를 패턴화하기 위해 수행되는 노광공정(photolithography process)에 견딜 수 있는 우수한 내화학성을 보유하고 있어야 한다. 따라서, 고유전율 절연재 내에 광 혹은 열에 의해 가교가 가능한 화학 구조를 도입함으로써 고유전율 절연재의 내화학성 개선이 가능하다.

4. 감광성

유기 절연재가 액정표시소자 혹은 유기 발광 소자의 게이트 절연막으로 사용될 경우, 패턴의 형성을 위해서는 노광공정이 요구된다. 감광제(photoresist, PR)를 사용하는 종래의 노광공정은 감광제 도포 공정, 마스크(mask)를 이용한 선택적 노광 및 감광제 제거 등의 복잡한 다단계 공정이 요구되는데, 유기 절연재 자체에 감광성기를 도입함으로써 현공정의 단순화가 가능하다. 즉, 유전체 및 PR의 역할을 동시에 담당할 수 있는 감광성 유기 절연재의 도입은 PR의 도포 및 제거 공정을 단순화할 수 있으며, 식각공정 수의 감소에 의해, 공정 단가의 저감에 크게 기여할 수 있다.

5. 높은 평탄화도

진공 증착에 의해 형성되는 무기 박막의 낮은 평탄화도로 인해 생성되는 게이트 절연막의 단차피복성(step coverage)은 소스/드레인 금속전극의 단선을 초래하며, 현재 이의 개선을 위해 게이트막 식각 시 모서리를 경사지게 하는 방법 등이 적용되고 있으나, 유기 절연재의 경우 분자량 제어에 의한 점도 제어에 의해 평탄화도의 개선이 가능하다. 즉, 유기 절연재의 평탄화도 개선을 위해서는 i) 분자량 제어, ii) 적합 용제의 선정, 및 iii) 공정 조건의 최적화 등의 접근 방법이 유용하다.

6. 계면 특성 최적화

TFT 소자 내에서 게이트 절연재는 전극소재 및 유기반도체 재료 등과 접착된 상태로 사용되기 때문에 우수한 계면 밀착성은 매우 중요한 요구 특성 중의 하나이다. 접착력이 불량한 경우 수분 침투 및 균열 발생의 원인이 되며 계면 밀착성을 개선하기 위한 방법으로는 i) 접착성이 우수한 단량체의 도입, ii) 계면 접착력 증가를 위한 커플링제

(coupling agent)의 도입, iii) 접착성 향상 첨가제의 도입 등이 대표적이다.

7. 절연파괴강도

절연파괴강도는 절연물에 전압을 가할 때 절연물이 파괴되는 최소의 전압(실효치)을 의미하며, 절연물의 절연파괴 전압(실효치)을 전극간의 거리(시험편의 두께)로 나눈 수치로 나타낸다. OTFT 소자에서 요구되는 절연파괴강도는 0.5MV/cm 이상이다.

절연파괴전압은 유전상수의 경우와는 달리 분자 구조와 반드시 정량적으로 변화하지는 않으나, 대개 분자구조, 시편 형상(specimen geometry) 및 시험조건에 영향을 받는다. 일반적으로 절연파괴전압은 전자의 구조(electronic structure), 즉, 밴드갭(band gap)의 크기와 비례하는 특성을 보이는데, 즉, σ -전자만으로 이루어진 화합물의 밴드갭은 π -공액전자구조에 비해 크기 때문에 높은 절연파괴전압을 보인다. 또한 소재 내에 존재하는 결함(defect)은 절연파괴전압을 감소시키는 반면, 결정성, 가교도 및 극성은 이를 증가시키는데 이는 분자 간 인력(cohesive energy)의 증가에 기인한 결과이다.

8. 고른 표면 형상

OTFT용 유기절연재는 그 위에 반도체의 이동도 저하를 방지하기 위해 고른 표면 형상을 요구한다. 표면 형상(surface topography)을 정량화하는데 사용되는 전형적인 파라미터는 표면거칠기(surface roughness)이다. 표면거칠기는 산술 평균값(arithmetic mean value), 제곱평균 제곱근 평균값(root mean square average), 최대 높이 값

(maximum roughness height) 등으로 표시된다. 이중 원자 힘 현미경 atomic force microscope, AFM 이미지의 표면조도(rms, root-mean-square)가 10nm 이하로 유지되는 것이 바람직하다.

V. 대표적인 고분자 유기절연재

현재까지 상기의 요구특성을 모두 만족시키는 유기절연재는 개발되어 있지 않으나, [표 1]에 보여주듯이 다양한 종류의 고분자소재들이 적용되어 성능이 검토되고 있다. 내열성 및 공정 안정성 측면에서 볼 때 폴리이미드 수지가 가장 전망이 높으나, 공정온도 및 계면 특성 제어에 있어서 개선 연구가 요구된다. 폴리비닐페놀(PVP)의 경우 가교에 반응에 의해 소자 특성의 개선이 가능하나 공정온도의 저하가 필요하다.

VI. 유기절연재의 개발 현황

1. 국내·외 관련분야의 환경변화

- 현재까지 보고된 국내 연구동향 및 기술 수준을 정리하면 다음과 같다.
- 유기절연재의 경우는 대부분 SiO_2 또는 Al_2O_3 등과 같은 무기절연재를 대신할 수 있는 소재의 개발 필요성에 의해 연구가 시작되었고, 무기절연재와 유기 반도체를 이용하여 제작된 소자의 연구 결과들을 모방하여 유기절연재를 이용한 소자에 그대로 적용되고 있다.

[표 1] 대표적인 고분자 유기절연재의 종류 및 특성 비교

유기절연재의 종류	특성
• Poly(vinylphenol) (PVP)	<ul style="list-style-type: none"> 낮은 내열성 및 내화학약품성 페놀기 존재로 인한 I-V 특성 불안정, 고온 가교반응 필요 (공정온도 ~ 200 °C)
• Benzocyclobutene (BCB)	<ul style="list-style-type: none"> 고온공정필요 : > 250 °C 내열성 우수 (유리전이온도 > 250 °C) 우수한 내화학약품성
• PMMA and related other polymers	<ul style="list-style-type: none"> 낮은 내열성 및 내화학약품성 저온공정 용이 < 100 °C
• Organic/inorganic hybrids : PI/TiO ₂ , PVP/TiO ₂	<ul style="list-style-type: none"> 높은 off-state leakage current 열성 및 내화학약품성 제어 용이
• Polyimide	<ul style="list-style-type: none"> 뛰어난 내화학약품성 뛰어난 내열성 (유리전이온도 > 300 °C) 카르복실산 및 말단 아니기 존재로 인한 불안전한 I-V 특성

[표 2] OTFT용 유기절연재 개발의 국내 연구동향 및 기술 수준

연구기관	기술 수준
한국화학연구원 (KRICT)	<ul style="list-style-type: none"> - 내열성($>250^{\circ}\text{C}$) 및 내화학특성이 우수한 고분자 절연재 개발 중. - 저온광경화형 폴리이미드 절연재를 이용한 소자 제작 - 전하 이동도 : $>0.06\text{cm}^2/\text{Vs}$, - 점멸비 : $>10^3$ - 감광성, 내화학약품성 보유
한국전자통신 연구원 (ETRI)	<ul style="list-style-type: none"> - 유전층 : SiO_2, SiN_x, 유기 절연재 - 펜타센 OTFT의 경우 전하 이동도 : $0.8\text{cm}^2/\text{Vs}$, 점멸비 : $>10^6$ - KRICT와의 공동연구로 유기절연재를 이용한 소자제작 - 알루미나를 이용한 passivation
L 기술원	<ul style="list-style-type: none"> - 내열성 $>200^{\circ}\text{C}$, 투명도 $>90\%$ 하이브리드계 유무기 절연재 개발 시도 L 및 S 기술원 - 펜타센과 유기 절연재를 이용한 OTFT의 이동도를 $5.0\text{cm}^2/\text{Vs}$을 보고
S 전자, 경희대, 동아대, 전자부품연구원	<ul style="list-style-type: none"> - 3', 해상도 50 ppi 급 플라스틱 - 유기 TFT array 제작 - 이동도 : $0.25\text{cm}^2/\text{Vs}$ - 점멸비 : 10^5

○ 위 [표 2]에서 보여주는 바와 같이 기업체, 정부 출연 연구소 및 대학을 중심으로 유기 반도체와 유기 절연재의 설계 및 합성에 중점을 둔 연구가 시도되고 있다.

○ 그러나, 상기 연구들은 외국의 연구결과들을 답습하는 경우가 많았으며, 그 결과 또한 기존의 결과를 뛰어넘지 못한 상태였다.

○ 2004년과 2005년 들어 유기절연재와 펜타센을 이용한 OTFT 소자는 국내 연구진에 의해 더욱 활발하게 연구가 진행되었고 그 대표적인 사례를 보면 다음과 같다.

○ 한국화학연구원 : 유기절연재로 저온가공형, 감광성 폴리이미드를, 유기 반도체로서 펜타센을 사용하여 OTFT 소자를 제작 보고하였다. 노광공정에 의해 유기절연막을 형성한 후 제작된 소자의 전계전하 이동도는 약 $0.1\text{cm}^2/\text{Vs}$ 정도이었다. 본 연구에서는 기존의 보고와는 달리 유기절연재 자체를 패터닝하여 OTFT 어레이 제작공정을 단순화 시킨 특징이 있다.(Appl. Phys. Lett. 86, 133508, 2005). 또한 전유기 디스플레이용 유기절연재의 요구 특성에 적합한 성능을 발현할 수 있는 신규 고유전율 유기 절연 소재의 개발 연구를 수행하였으며, 그 결과, 고유전율 감광성 유기 절연재 설계 및 분자 구조 개선에 의한 절연재 특성의 최적화, 고유전율 유기절연재에 기능성을 부여하기 위한 기능성 단량체 및 중합체의 제조 기술을 확립하였다(Adv. Funct. Mater. 15, 3, 2005).

○ 경희대 : 유기절연재로서 가교된 폴리비닐페놀(PVP)을 사용하였고 유기반도체로는 펜타센을 사용한 OTFT를

제작 보고하였다. 펜타센을 이용한 대부분의 연구보고들은 펜타센의 미세형상화(patternability)를 고려하지 않았으나 상기 연구에서는 펜타센이 증착될 부분의 표면특성(surface properties)을 조절한 펜타센의 선택적 성장기술(selective pentacene growth technique)을 이용하여 미세형상화를 시도하여 Ion/Ioff 비는 10^7 이고 전하이동도는 $1.2\text{cm}^2/\text{Vs}$ 정도의 연구 결과를 보고하였다.(Adv. Mater. 16, 732, 2004).

○ 서울대 : 유기절연재를 OTFT 소자에 적용하는 다양한 연구를 진행하고 있는 연구 그룹으로 최근에 유기절연재로 PVP와 PVAc를 사용하고 유기반도체로 미세형상화 기술을 사용하여 OTFT를 제작 보고하였다. 이 보고에서는 단일 유기절연재가 아닌 이중 유기절연재가 소자 특성에 미치는 영향에 관하여 보고하였다. 소자의 전계전하이동도는 약 $0.1\text{cm}^2/\text{Vs}$ 이었다.(Appl. Phys. Lett. 85, 2283, 2004)

○ 포항공대 : 게이트 절연재의 표면 처리에 관한 연구를 활발히 하고 있는 그룹이다. 표면처리를 위해 사용되는 자기 조립단일막(SAM)의 분자 구조가 소자 특성에 미치는 영향에 관한 연구를 수행하고 있다. 특히 이 그룹은 증착이 가능한 단분자보다는 용액 공정이 가능한 고분자 유기 반도체에 더욱 관심이 있고, 최근 들어 다수의 흥미로운 연구결과를 보고하고 있다(Adv. Funct. Mater. 15, 77, 2005).

○ 삼성종합기술원 : 국내에서 가장 좋은 결과를 구두로 보고하고 있는 연구그룹이나(전계전하이동도 : 약 $7.0\text{cm}^2/\text{Vs}$), 문헌으로 보고된 자료들은 찾아보기 힘들다. 그러나 유기절연재 및 용액공정이 가능한 유기반도체 관련 연구를 활발히 하고 있는 것으로 알려져 있다.

○ 성균관대학교 : 고분자 절연재에 존재하는 하이드록시기의 함량이 OTFT의 히스테리시스(hysteresis)에 미치는 영향을 조사하였다. 유전체 내부에 존재하는 하이드록시기의 함량이 증가할수록 전자의 트랩량(electron trapping)이 증가하여, 히스테리시스 및 게이트 누설전류의 증가를 보였다. 높은 홀(hole) 이동도에 기인한 높은 이동도($\sim 5.5\text{cm}^2/\text{Vs}$)를 나타내었다.(Appl. Phys. Lett. 88, 162109, 2006)

2. 국외의 경우

국내의 경우와 마찬가지로 OTFT에 관한 연구가 활발히 진행되고 있고 그 결과들이 계속해서 보고되고 있는 실정이다. 특히 유기절연재를 이용한 전유기소자 구현에 많은 연구가 진행되고 있다. 상세한 국내·외 연구동향을 살펴보기 위하여 OTFT용 유기절연재와 유기반도체에 관련하여 현재 까지 보고된 대표적인 연구사례들을 유기절연재, 유기 반도체, 기판 등을 망라하여 정리하면 다음 [표 3] 및 [표 4]와 같다. [표 3]에서는 증착(유기분자) 가능한 유기 반도체와 여러가지 유기절연재를 이용하여 제작된 OTFT의 소자들의 특성을 최근 결과부터 정리하였고, [표 4]에서는 용액 공정용(고분자 및 올리고머) 유기 반도체와 유기절연재를 이용한 OTFT의 소자특성들을 정리하였다.

[표 3] 진공 증착용 유기반도체와 유기절연재를 이용한 OTFT 관련 보고

유기절연재	반도체	이동도 (cm ² /Vs)	기판	특이 사항
Polyimide	펜타센	0.48	Glass	Patterning이 가능한 polyimide 유전재 사용
Polyimide	펜타센	0.27~0.71	PES	저온 공정용 patterning이 가능한 polyimide 유전재 사용
Crosslinked PVP	Thiophene	0.5	Si wafer	
Polyimide	펜타센	0.27~0.71	polyimide	측정 온도에 따른 이동도의 변화 연구
Crosslinked PVP	펜타센	0.06	PEN	stamping법을 이용한 게이트 전극 패턴
Polyimide	펜타센	0.3	PEN	Bending stress하에서의 측정
PMMA	펜타센	0.01	Si wafer	
PVP/PVAc	펜타센	0.1	glass	두층의 유전체재를 사용하여 성능향상 시도
PMMA	펜타센	0.75	Aluminum	
Crosslinked PVP	펜타센	1.2	PES	Selective growth of 펜타센
phenoxy-OTS(2.5nm)	펜타센	0.05	Si wafer	SAM mono layer를 gate insulator로 사용.
Crosslinked PVP	펜타센	1.3	PES	Undercut effect
PS	펜타센	0.16	Glass	Deporation rate effect
PVP	펜타센	0.2	Paper	종이를 기판으로 사용한 TFT 제작
Polyimide	펜타센	0.3	PEN	-
PMMA	펜타센	0.01	Si wafer	-
PVP	펜타센	0.4	glass	-
Polyimide/SiO ₂	펜타센	0.75	Si wafer	Photoaligned polyimide를 통한 펜타센의 분자배향을 통한 TFT 성능 향상
Poly(chloro-p-xylene)	펜타센	10 ^{-4~5}	glass	Ca source and drain을 이용한 ambipolar 특성 고찰
PS	tetracene	0.2	Si wafer	Single crystal 이용
parylene	rubrene	8		Rubrene single crystal을 이용.
polyacrylate/Al ₂ O ₃	펜타센	0.01	PEN	2-layer 유전재 사용
PVP	NTCDA	0.02	Si wafer	-
Crosslinked PVP	펜타센	0.7	PEN	-
PMMA	Oligothien -ylenevin -ylenes	0.05	Glass	-
PVP	Oligothiop -hene	1.1	Si wafer	분자구조와 TFT 성능 관계

[표 4] 용액 공정용 유기반도체와 유기절연재를 이용한 OTFT 관련 보고

유기절연재	반도체	이동도 (cm ² /Vs)	기판	특이 사항
PEO:LiClO ₄ ·H ₂ O	펜타센	0.01	Si wafer	Insulator의 capacitance를 높이기 위해 polymer electrolyte 사용
Polyimide	Polythiophene	10 ⁻⁵	glass	
PHEMA	P3HT	0.1	glass	P3HT의 용매효과
Polyimide	Polyphenylene -ethylene	NA	glass	Photoresponse effect

유기절연재	반도체	이동도 (cm ² /Vs)	기판	특이 사항
PVCN, Epoxy/PMMA	PEDOT, PPy	NA	PET, PP	Flexible all polymer TFT
PMMA, PVP PHEMA, PS	P3HT	10 ⁻³	glass	Dry transfer fabrication method
PVP	펜타센	0.004	Si wafer	E-paper display with OTFT
CYPEL, PVP, PVOH	P3BT	0.04	polyimide	사용된 용매와 insulator의 기본특성과 TFT 특성간의 관계 연구
PMMA	P3HT	0.001	PET	Flexible all polymer TFT
PMMA blend	P3HT	0.02	PET	TFT에 조사된 광량에 따른 TFT 특성 연구
BCB	Polyfluorene co-polymer	10 ⁻⁴	glass	Ultra thin polymer gate insulator
poly(4-methylstyrene)	PTPTP, F15-NTCDI	0.02	glass	Polarizable 유기 저연체 사용하여 비휘발성 메모리 component 보고
polymer photoresist	P3HT	0.003	polyimide	Flexible all polymer TFT
PVP	F8T2	0.1	glass	LC alignment layer를 통한 F8T2의 분자 배열 향상

○ 위의 [표 3]과 [표 4]에서 보여주는 것과 같이 지금까지의 연구 결과를 종합해 보면, 일부 연구 그룹에서는 유기 절연재와 유기반도체를 이용하여 이동도나 제반 성능지수 (performance parameter)가 상대적으로 좋은 OTFT 단위소자를 보고하고 있지만, 본 핵심개발 사업의 최종 목표인 유기 디스플레이에 적용될 만큼의 성능과 안정성을 보이는 고성능 OTFT를 위한 최적의 유기 절연재의 개발이 완료되지 않았음을 알 수 있다.

○ [표 3]과 [표 4]에서 정리되어진 바와 같이 유기절연재로는 주로 가교 PVP와 그 유도체, 폴리이미드(PI), 폴리메틸메타아크릴레이트(PMMA)와 그 유도체, 벤조시클로부텐(BCB) 및 폴리스티렌(PS) 등이 OTFT용 유기절연재로서 사용되고 있다.

○ 일부 그룹에서는 유/무기 하이브리드 소재를 유기절연재로 사용하여 OTFT 성능 향상을 도모하고 있으나, 소자 특성은 미흡하다. 또 다른 그룹은 단층 유기절연재가 아닌 다층 구조의 유기절연재를 사용하여 표면 특성과 벌크 특성 조절을 통한 OTFT 특성제어를 시도하고 있다. 또한 두 가지 이상의 유기절연재의 혼합(blending)을 통한 연구도 이루어지고 있다.

○ OTFT 성능 향상을 위하여 유기절연재의 표면 처리 및 다층화(multi-layer) 등을 통한 최적 공정 조건을 확립하는 연구가 계속되고 있다.

○ OTFT의 안정성 확보를 위한 연구의 일환으로 수분과 온도의 영향을 통한 소자의 장기신뢰성(life time)에 관한 연구도 일부 진행되고 있다.

○ 유기절연재 연구에 사용되어진 중착용 유기반도체는 성능이 가장 우수하다고 국내·외적으로 보고되어진 펜타센

이 대부분을 차지하고 있는 실정이다. 펜타센과 유기절연재로 이루어진 OTFT의 전계전하 이동도는 대부분의 경우 0.1~1.0cm²/Vs 정도로 보고되고 있으나, 5.0cm²/Vs 이상의 보고도 있다. Rubrene single crystal과 parylene을 각각 유기 반도체와 유기절연재로 사용한 OTFT의 경우는 전하이동도가 8cm²/Vs 정도까지 보고된 바 있다.

○ 용액공정용 유기반도체와 유기절연재로 이루어진 OTFT 연구의 경우는 중착용 유기 반도체와 마찬가지로 가교 PVP와 그 유도체, 폴리이미드(PI), 폴리메틸메타아크릴레이트(PMMA)와 그 유도체가 주로 사용되고 있고 유기 반도체로는 polythiophene과 polyfluorene 유도체들이 주로 사용되고 있다. OTFT의 전계전하 이동도는 대부분의 경우 0.001~0.1cm²/Vs 정도로 보고되고 있다.

○ 현재의 기술 수준을 바탕으로 향후 연구 방향은 유기 반도체 연구그룹과 유기절연재 연구 그룹의 공동 연구를 통한 전유기 OTFT의 구현에 초점이 맞추어질 것으로 예상된다.

VII. 결 론

본 총설에서는 전유기 디스플레이의 핵심소자로서 최근 학계와 산업체에서 각광을 받고 있는 OTFT와 이의 중요한 구성요소인 유기절연막의 요구특성과 국내·외 연구동향에 대해서 살펴보았다. 유기절연재의 기본적인 요구특성은 높은 내열성, 내화학약품성, 감광성 및 높은 절연파괴전압 등을 만족시켜야 한다. 뿐만 아니라 OTFT 특성의 최적화를 위해서는 낮은 표면조도(높은 평탄화도), 높은 유전상수 및 낮은 표면 극성 등의 특성 또한 중요하게 고려되어야 한다. 현

[표 5] OTFT 절연재 관련 국내·외 기술 수준 비교

구 분	세계 최고 수준			국내 수준		2년후 기술 수준 전망
	보유국	기관명	Spec.	기관명	수준	
Flexible 기판 OTFT 기술	일본	Tokyo University	이동도 $0.3\text{cm}^2/\text{Vs}$	한국화학 연구원	이동도 0.34 cm^2/Vs SS : 3.1	
감광성 폴리이미드 절연재 응용 기술	대만	Institute of Electro-Optical Science and Engineering	이동도 $0.75\text{cm}^2/\text{Vs}$	한국화학 연구원	이동도 0.48 cm^2/Vs	- 이동도 $> 1.0\text{cm}^2/\text{Vs}$ - SS < 3.0 - 공정온도 $< 130^\circ\text{C}$ - 내화학성 : PR test pass - on/off ratio $> 10^7$
유기절연재	독일	Infineon Technology AG	이동도 $3.0\text{cm}^2/\text{Vs}$	한국화학 연구원	이동도 0.94 cm^2/Vs	
				경희대	이동도 3.0 cm^2/Vs	
				S 전자	이동도 5~7 cm^2/Vs	

재 대부분의 연구는 OTFT의 성능향상을 위하여 새로운 유기반도체의 개발 및 그 순도와 결정화도를 높이는 연구에 치중되어 있다. 반면 새로운 유기절연재의 개발 및 연구는 유기반도체의 연구에 비하여 상대적으로 미흡한 위치에 있으나 유기절연재의 개발 및 특성 연구의 중요성이 최근 들어 부각되고 있고 국내외 연구진을 중심으로 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 균형적인 OTFT의 연구는 앞으로 전유기 디스플레이의 실현을 앞당기는데 핵심적인 역할을 할 것으로 기대되고 있으며, 화학, 물리, 재료, 전자학 분야 전문가들의 유기적인 상호협력이 OTFT를 통한 전유기 디스플레이의 실현을 위해 절실히 요구되고 있다. 참고적으로 유기절연재 개발과 관련하여 현재의 기술수준 및 향후 전망을 정리하면 [표 5]와 같다.

참 고 문 헌

- [1] P.K. Weimer, "The TFT-A New Thin-Film Transistor" Proc. IEEE 50, 1462, 1962.
- [2] G.H. Heilmeier, L.A. Zanoni, *J. Phys. Chem. Solids*, 24, 603, 1964.

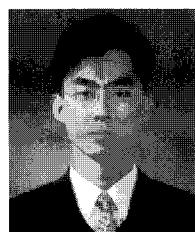
- [3] F. Ebisawa, Tkurokawa, S. Nara, *J. Appl. Phys.*, 54, 3255, 1983.
- [4] C. Gray, J. Wang, G. Duthaler, A. Ritenour, P. Drzaic, Proc. SPIE, 89, 4466, 2001.
- [5] J. Ficker, A. Ullman, W. Fix, H. Rost, W. Clemens, Proc. SPIE, 95, 4466, 2001.
- [6] M.G. Kane, J. Campi, M.S. Hammond, F.R. Cuomo, B. Greening, C.D. Sheraw, J.A. Nichols, D.J. Gundlach, J.R. Huang, C.C. Kuo, L. Jia, H. Klauk, T.N. Jackson, *IEEE Electron Device Lett.*, 21, 11, 2000.
- [7] a) R. Schroeder, L. A. Majewski and M. Grell, *Appl. Phys. Lett.*, 84, 1004, 2004; b) R. Schroeder, L. A. Majewski and M. Grell, *Appl. Phys. Lett.*, 83, 3201, 2003.
- [8] C. D. Sheraw, D. J. Gundlach and T. N. Jackson, MRS Proc., 558, 403, 2000.
- [9] M. Matters, D.M. de Leeuw, M.J.C.M. Vissenberg, C.M. Hart, P.T. Herwig, T. Geuns, C.M.J. Mutsaers, S.J. Drury, *Opt. Mater.*, 12, 189, 1999.

저자소개



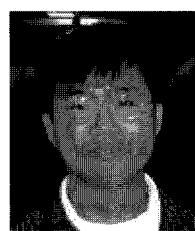
이미혜

1983년 서울대학교 화학교육과 이학사,
1985년 한국과학기술원 화학과 이학석
사, 1991년 한국과학기술원 화학과 이
학박사, 1985년~현재 : 한국화학연구원
고분자나노소재연구팀 책임연구원



안택

1996년 부산대학교 화학과 이학사,
1998년 한국과학기술원 화학과 이학석
사, 2001년 한국과학기술원 화학과 이
학박사, 2001년~2002년 : 한국과학기
술원 자연과학연구소, Post-doc, 2002
년~2004년 : Max Planck Institute
for Polymer Research, Post-Doc, 2004년~2006년 : 삼성
SDI 중앙연구소 Display 1 Team 책임연구원, 2006년~현
재 : 한국화학연구원 고분자나노소재연구팀 선임연구원



표승문

1996년 부산대학교 고분자공학과 공학
사, 1998년 포항공대 화학과 이학석사,
2003년 UCLA 재료공학과 공학박사,
2003년~2006년 : 한국화학연구원 고분
자나노소재연구팀 선임연구원, 2006년
~현재 : 건국대학교 화학과 조교수