

유기발광 FET(OLEFET) 개발동향

김규식 · 이창승 · 황억채 · 김유진

1. 서론

Conjugated polymers는 유기 EL(OLED) 또는 thin film transistor(TFT)와 같은 display 관련 device로의 응용 가능성 때문에 많은 연구가 있어 왔다. 특히 유기 EL 디스플레이는 고효율·자발광·박형 디스플레이로 제작 가능하기 때문에, 차세대 flat panel 디스플레이로 주목 받고 있다. 효율이나 수명 등을 고려하지 않은 유기 EL의 기본구조는, 양극과 음극 사이에 유기 발광층만이 위치한다. 그러나 유기 EL의 전기적 특성을 높이기 위한 연구가 진행되면서 새로운 박막층들이 삽입되었다. 각 층은 역할 또는 기능에 따라 양극, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층, 음극으로 구분할 수 있다. 또한 재료에 따라 blocking층 등 새로운 층이 삽입 또는 생략 되기도 하며, 정공 또는 전자의 이동 및 발광위치를 조절하여 최고의 디바이스 특성을 얻기 위한 노력이 계속되고 있다. **그림 1**에 표시한 유기 EL의 발광 메카니즘을 보면, 양극에서는

정공이 주입되고 음극에서는 전자가 주입된다. 발광층 안에서 정공과 전자가 결합하게 되고, 분자여기자가 생성되며 1중항(25%)과 3중항(75%)의 여기 상태로 나뉘어진다. 따라서 3중항의 발광(인광)을 이용하면 발광효율을 훨씬 더 높일 수 있고, 현재에는 내부 발광 양자효율이 거의 100%에 달하고 있다.¹ 이처럼 발광효율이 높으며 자체 또는 색변환 층이나 칼라필터를 이용한 RGB 발광이 가능하다는 점 때문에, LCD PDP에 뒤이어 제3의 FPD(flat panel display)로서 기대 되고 있다. 현재의 적층형 유기 EL 디바이스에 관한 연구는 1980년대 후반부터 초창기의 연구단계를 거쳐, 1990년대에는 민간 기업들이 실용화를 목표로 재료와 디바이스에 대한 연구를 시작하였다. 대학에서도 유기반도체에 대한 기초 물리과정의 해명과 유기 고체 박막 안에서의 광물리 과정에 대한 기초연구에서 대단한 연구성과를 내었다. 약 10년 간의 연구기간을 통해 유기물의 내구성에 대한 불신감을 극복할 수 있었으며, 2000년에는 본격적인 실용화의 시대가 열렸다. 아직 유기 EL 디바이스의 특성저하



김규식
1989 전북대학교 화학교육과 (학사)
1996 동경대학교 화학생명공학과 (석사)
2000 동경대학 화학생명공학과 (박사)
2006~ 삼성종합기술원 Nano Fabrication Center 전문 연구원
현재



황억채
1995 서라벌대학 졸업
1995~ 삼성종합기술원 Nano Fabrication Center 연구원
현재



이창승
1992 KAIST 재료공학과 (학사)
1995 KAIST 전자재료공학과 (석사)
2000 KAIST 재료공학과 (박사)
2000~ 삼성종합기술원 Nano Fabrication Center 전문 연구원
현재



김유진
1985 서울대학교 화학과 (학사)
1994 Cornell University, 재료공학과 (박사)
1995 Princeton University Postdoctoral Fellow
1995~ 홍익대학교 정보디스플레이공학대학원, 기초과학과 부교수
현재

Technology Trends of Organic Light Emitting Field Effect Transistors

삼성종합기술원 NFC (Kyu-Sik Kim, ChangSeung Lee, and Eokchae Hwang, Nano Fabrication Technology Center, Samsung Advanced Institute of Technology, Mt. 14-1, Nongseo-Ri, Giheung-Eup, Yongin-Si, Gyeonggi-Do 449-712, Korea)
e-mail: kyuskim@samsung.com
홍익대학교 정보디스플레이공학대학원 기초과학과 (Eugene Kim, Hongik University Department of Applied Science, School of Engineering, 72-1, Sangsoo-dong, Mapo-gu, Seoul 121-791, Korea)

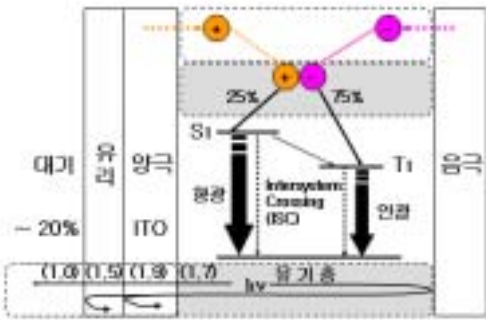


그림 1. 유기EL소자의 발광구조 개념도.

메카니즘의 원인을 완전하게 해명 하지는 못했지만, ① 분자자체의 산화환원 반응에 대한 안정성 ② 박막의 모폴로지 안정성 ③ 산소와 수분 제거 등의 각 프로세스를 제어 함으로서 1만 시간 이상의 내구성을 달성했다. 이처럼 유기 EL 소자는 표시 디바이스로서 순조롭게 성장해 가고 있다. 그렇지만 실제 디스플레이를 제작하려 할때, 특히 대형 디스플레이를 제작하려 할때는 각 화소에 TFT가 위치하는 active matrix 구동회로가 필요하다. 유기 EL 디바이스의 장점 중 하나로 ① 저온공정 가능 ② plastic film 등의 플렉시블한 기판에 대한 공정 용이성 등을 들 수 있다. 그런데 구동회로로 a-Si TFT를 사용한다면, 저온공정의 이점과 LCD 대비 제조공정의 가격 경쟁력 우위성을 상실 할 위험이 있다. 그래서 active matrix 구동회로로 유기 TFT를 사용하여 유기 EL의 가격 경쟁력을 높이려는 노력이 1990년대 후반부터 있어 왔다.

유기물을 이용한 트랜지스터의 연구는 1980년대 초반부터 시작되었다.² 과거 유기물의 이동도는 $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 정도면 고속 이동도로 보고 되었으나, 이제는 무기물의 이동도에 필적하는 polymer based 트랜지스터에 대한 연구도 보고 되고 있다.³ Polymer based 트랜지스터는 스피노코팅이나, 잉크젯 프린팅이 가능하여 저가격과 저온 공정에도 유리하다. 특히 tetracene, rubrene 등의 축합다환 방향족 화합물을 사용한 연구에서는 유기 EL의 구동에도 충분할 것으로 예상되는 $\sim 10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 의 이동도를 달성하여 유기 TFT로 구동되는 유기 EL 디스플레이의 실현 가능성을 한층 더 높였다.⁴

한편 유기 TFT의 실현 가능성이 높아지면서, 유기 EL과 유기 TFT의 기능을 통합한 새로운 디바이스에 대한 관심이 고조되었다. 만약 EL 특성을 갖는 유기 TFT가 실현된다면 ① 화소수 증가에 따른 개구율 향상 ② 회로 간략화 ③ 공정 간소화 등의 장점을 갖게 되어, 우수한 디바이스 특성과 가격 경쟁력이 우수한 신 개념의 디스플레이 등장이 가능해질 것으로 예상된다. 근래에 주로 연구 되고 있는 유기 TFT의 디바이스 형태는 unipolar accumulation mode 이지만, 원리적으로는 ambipolar mode 작동이 가능하다. Ambipolar operation mode의 TFT는 carrier의 재결합을 일으켜, exciton을 형성하고 발광을 유도할 수 있다. Lucent사의 SchÖn은 Oligothiophene 단결정을 이용하여 제작한 FET가 Ambipolar mode에서 빛을 발한다는 보고를 하여, 유기발광 FET에 대한 관심을 증폭시키는 계기를 만들었다(현재는 취소된 논문).⁵ 그 이후 많은 연구진들에 의해 발광하는 유기 FET에 대한 연구가 진행되어 왔으나 두드러진 성과 발표는 없었다. 반면 무기 TFT에서의 발광은 이미 1950년대에 보고 되었다.⁶ 2003년 Heep과 그의 동료들은 증착 방식으로 적층한 tetracene과⁷ 스피노 코팅한 poly-

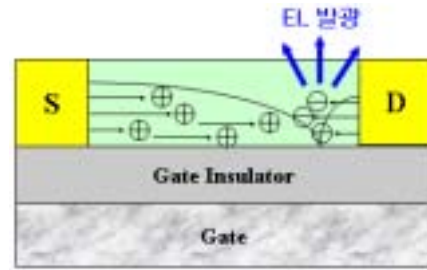


그림 2. 발광 메카니즘.

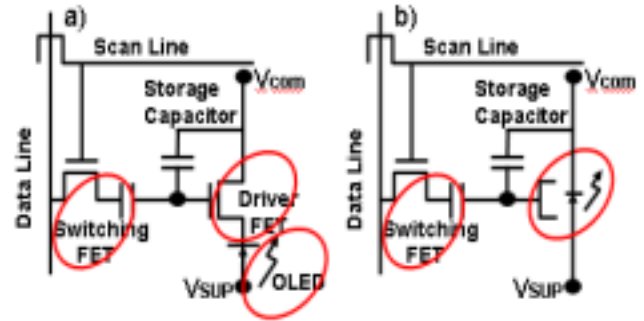


그림 3. 구동 회로. (a) 유기 EL and (b) 유기발광 FET.

fluorene FET가⁸ unipolar mode로 발광함을 보고하여 유기발광 FET의 가능성을 재확인하였다. 본 발광은 dielectric break down 현상이나, leakage current에 기인하지 않았다. 이후 PPV계 고분자,⁹ thiophene계 올리고머¹⁰ 등 발광성 FET 재료에 대한 연구가 점차적으로 확대 되고 있다. 그림 2는 Adachi 그룹이 발표한 발광 메카니즘이다.

Heep 그룹에서는 active layer-용 유기물질로 p-type의 물질을 사용하여, 발광 메카니즘을 설명한다. Gate에 전압을 인가하면 정공 (+)이 active layer 층과 gate insulator 사이에 축적되고, source와 drain 사이의 전압을 상승시키면, drain 전극 가까운 곳에 pinch-off 점으로 불리는 정공이 없는 영역이 생성되고, pinch-off 영역과 drain 전극 계면 간에 형성된 강전계는 drain 전극으로부터의 전자 (-) 주입을 용이하게 한다고 설명하고 있다. 그림 2에서는 Au 금속을 source/drain 전극으로 사용되고 있다. 현재 유기발광 FET의 EL 발광 양자효율은 0.01% 정도인데, 이는 drain 전극으로부터의 전자 주입 효율이 낮기 때문으로 판단 되며, 전자주입 효율을 높이기 위해 새로운 전극재료의 개발과 active layer-용 물질 개발이 필요하다. 그림 3에서는 간단하게 유기EL과 유기발광 FET의 구동회로를 비교했다. 유기발광 FET에서는 driver FET와 OLED 발광부위의 일체화가 가능해져서 구동회로의 단순화가 예상된다.¹¹

2. Device 제작

유기발광 FET와 관련된 논문들에서 일반적으로 많이 사용하고 있는 전극 제작 공정을 그림 4에 표시하였다. n-type Si/SiO₂(ca. 300 nm)기판을 세정하고 건조한 후, SiO₂(gate insulator) 위에 photoresist(PR)을 코팅한 다음, hot plate를 사용하여 soft bake



그림 4. 유기발광 FET용 전극 제작.

한다. 노광-bake-develop 과정을 거쳐서 PR 패턴을 형성 한 후, Adhesion layer로 Cr 금속을 증착하고, source/drain 전극으로 사용되는 Au 금속을 증착 한다. Lift off 공정으로 Au 금속으로 이루어진 전극 패턴을 형성하고, acetone과 isopropyl alcohol(IPA) 등을 사용하여 기판에 남아 있는 불순물을 제거한다. 전극 형성과 마지막 세정이 끝난 기판은 표면처리(SAM)를 한 후에, active layer로 사용되는 도전성 유기물을 증착 또는 스핀코팅 하여 유기 발광 FET용 디바이스를 제작한다.

3. 개발동향

3.1 저분자 박막을 이용한 유기발광 FET⁷

Tetracene 박막으로 TFT 특성과 EL 특성을 동시에 구현하는데 성공하여, 유기발광 FET에 대한 연구를 비약적으로 발전시켰다. 기판은 tetracene 증착 전에 필름의 균일성과 표면 접촉성을 향상 시키기 위해 SAM 처리를 하였고, SAM 처리 후 즉시 chamber로 이동시켜 tetracene을 증착 하였다.

제작된 device는 saturation behavior을 보이는 unipolar field effect transistor 특성을 보였으며, hole accumulation mode에서 동작하였다(그림 5).

그림 6에서는 source 전극에서의 접촉저항에 기인한 saturation 현상을 보인다.

VGS=-80 V에서 구한 Hole mobility (μ_h)는 $5 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 였고, threshold voltage(V_{th})는 -25 V 였다. 그리고 1×10^6 의 on/off ratio를 얻었다. Threshold voltage(V_{th})=-25 V는 정공의 이동에 대한 trap site가 많음을 의미하며, 정공에 대한 Injection barrier가 존재함을 의미한다. 또한 저전압 하에서의 shaped output characteristic은 Au 전극에서 나온 정공이 Tetracene HOMO 준위에 도달하는데 injection barrier를 경험하고 있음을 나타낸다. n-type inversion mode에서는 작동하지 않았으며, 전자의 이동도는 낮으며, 전자의 주입도 거의 없는 것 같다. 그럼에도 불구하고 고전압에서 발광을 보여주는 것은 정공과

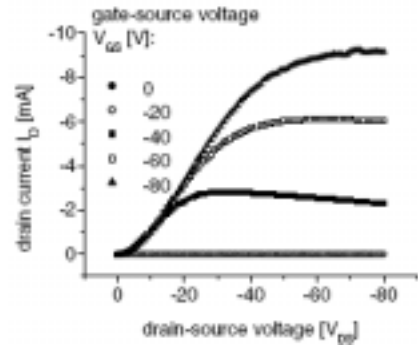


그림 5. Output characteristics for different gate-source voltages.

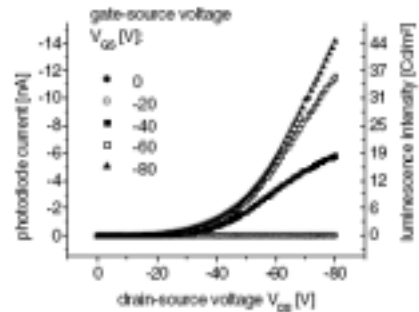


그림 6. Transfer characteristics for different drain-source voltages.

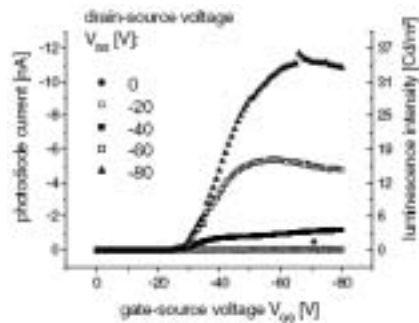


그림 7. Optical output characteristics for different gate-source voltage.

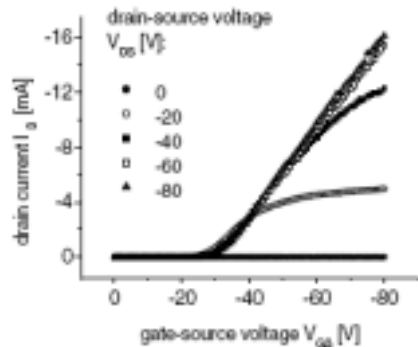


그림 8. Optical transfer characteristics for different drain-source voltage.

전자가 주입 되고 있음이 분명하다. Optical characteristics은 그림 7, 8에서 볼 수 있다.

Source-drain 전압(VDS)을 증가시키면, saturated drain current (I_D)에서도 발광은 증가 했다. 이는 주입되는 전자의 증가에 기인하며, 발광은 정공과 전자 비의 균형을 유지하게 하는 역

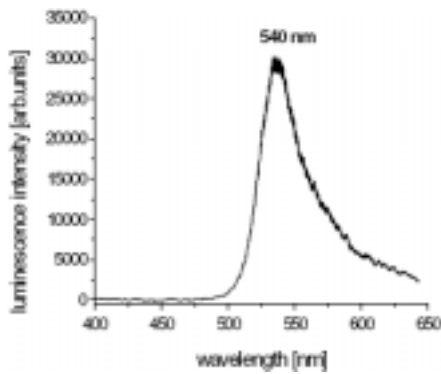


그림 9. Emission spectrum at VGS = -80 V and VDS = -80 V.

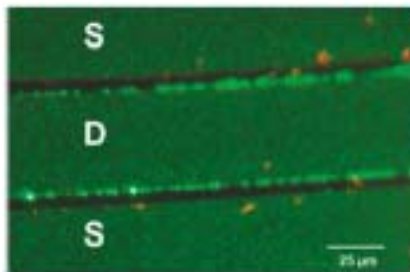


그림 10. Picture of an operating OLEFET.

할도 하여 발광을 증가시킨다. 그림 9에 유기발광 FET의 emission spectrum을 나타냈다. emission spectrum의 center는 540 nm로 tetracene 박막의 emission spectrum과 동일하다.¹²

대략적인 값이긴 하지만 luminance는 45 Cd/m²였으며, luminance 효율은 0.0024 Cd/A로 정공이 source-drain간 전류의 원인이 되며, 소량의 정공과 전자만이 재결합하여 빛을 내고 있음을 의미한다. 또한 상대적으로 전자의 주입량이 적음을 의미하기도 한다.

Gate insulator를 통한 전자 leakage가 tetracene 박막 층의 정공과 만나 발광할 가능성을 테스트하기 위해, S/D 전압을 높여가며 gate current를 조사했지만, gate current는 오히려 감소하여 발광과 무관함이 증명되었다. 그림 10에서 보이는 것처럼 발광은 drain 전극 부분에서만 일어난다. 또한 발광부위는 가해지는 전압과 무관한데, 이는 gate oxide leakage 전류에 기인하는 발광이 아니라는 명백한 증거이다. 만약 발광이 leakage 전류에 기인한다면, 발광은 transistor 전 영역에서 관찰될 것이며, source 전극 부근에서 가장 강한 발광이 관찰 되어야 할 것이다.

본 연구의 working principle은 트랜지스터가 정공 accumulation mode에서 작동하고, 이는 Au(work function은 5.1 eV)에서 tetracene(HOMO Level은 5.4 eV)으로의 정공 이동에 대한 상대적으로 낮은 injection barrier로 설명하고 있다.¹³ 반면 전자의 주입을 설명하기 위해서는 tetracene(LUMO Level은 2.4 eV)과 Au의 injection barrier인 2.7 eV를 극복해야 하기 때문에, thermal energy 이외에도 high electric field와 이상적인 device의 구조에서 해답을 찾고자 했다. 디바이스에 대한 scanning electron microscopy(SEM) 조사로 Au 전극과 oxide 표면 사이에 생성된 underetch에 의한 rough edge를 확인하였다(그림 11).

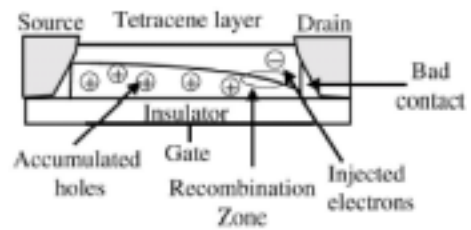


그림 11. OLEFET in hole accumulation mode.

Underetch된 drain과 source 전극의 형태는 tetracene 증착시 shadowing effect로 작용하게 되고, S/D 전극과 gate oxide 사이에 bad contact 생성의 원인으로 작용한다. Bad contact 때문에 drain 전극은 OLED의 음극과 같은 역할을 하여, active layer인 tetracene 박막에 전자를 주입하게 되고, channel 층이 양극 역할을 한다.

Tetracene을 active layer로 사용한 유기발광 FET는 unipolar 유기 TFT와 비슷한 전기적 특성(정공 accumulation mode로 작동)을 나타냈다. 발광의 세기는 gate voltage와 drain voltage로 조절할 수 있었으며, transistor channel에서는 정공이 주입되고, drain 전극에서는 전자가 주입되어 이 둘의 재결합으로 발광이 일어남을 보여주었다.

3.2 고분자 박막을 이용한 유기발광 FET⁸

Active layer로 polyfluorine 유도체를 사용하여 VDS(source-drain 전압) = -60 V 이상에서 발광을 확인 하였다. Au로 S/D 전극을 제작하고 O3과 SAM 처리를 통해 Gate insulator 표면을 소수성으로 만들었으며, gate insulator와 active layer의 접착성을 높였다. 이어서 스프인코팅/annealing 과정을 거쳐 polyfluorine 유도체를 active layer로 갖는 유기발광 FET를 제작하였다.

Gate voltage가 -60 V이 될때까지는 unipolar hole accumulation mode에서 작동하는 TFT와 같은 모습을 보인다(그림 12(a)). 그림 12(a)의 삽입된 그림에서는 drain voltage가 -20 ~ -40 V일때, drain current saturation이 일어남을 볼 수 있다. Poly(9,9'-di(ethylhexyl) fluorine Film(HOMO : 5.8 eV, LUMO : 2.1 eV)에 대해, Au(work function 5.1 eV) 전극으로부터 정공 주입을 위한 injection barrier는 0.7 eV이고, 전자 주입을 위한 injection barrier는 3 eV이다. 따라서 본 device는 정공 accumulation mode로 작동할 것으로 예상되며, 전자 injection은 상상하기 힘들다.

그럼에도 불구하고, 발광현상(그림 12(b))이 발생하는 까닭은, polyfluorine 유도체 박막에 정공과 전자의 injection이 일어나고 있음을 의미한다. Gate insulator를 통한 leakage current가 electron source의 가능성이 될 수 없음은 참고문헌 7에서도 확인되었다. Underetched 된 전극 하부의 빈 공간 때문에 OLED 구조가 만들어지게 된다(그림 13). 즉 drain 전극은 cathode로, 정공 accumulation layer는 anode로 작용하게 되고, 발광의 세기는 Gate 전압으로 조절할 수 있다. Active layer로 작용하는 polymer층은 얇을수록, drain 전극은 바늘처럼 뾰족한 emission point를 가질수록 field injection을 통한 전자 injection의 가능성은 높아지는 것으로 예상하고 있다.

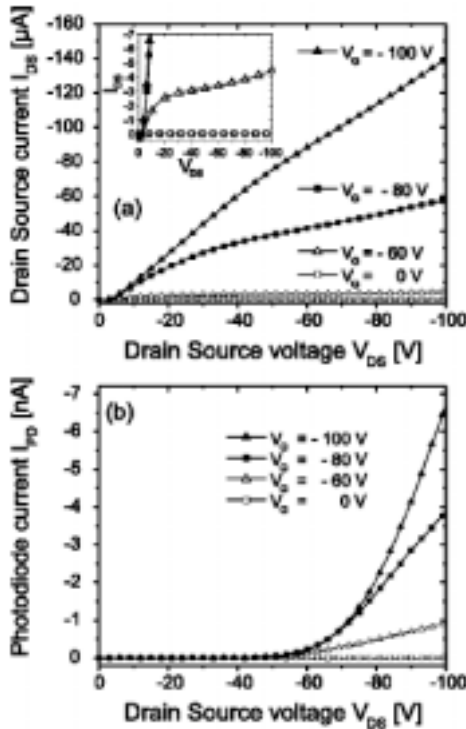


그림 12. Transistor characteristics of a polyfluorene light emitting transistor: (a) output characteristics and (b) emission characteristics.

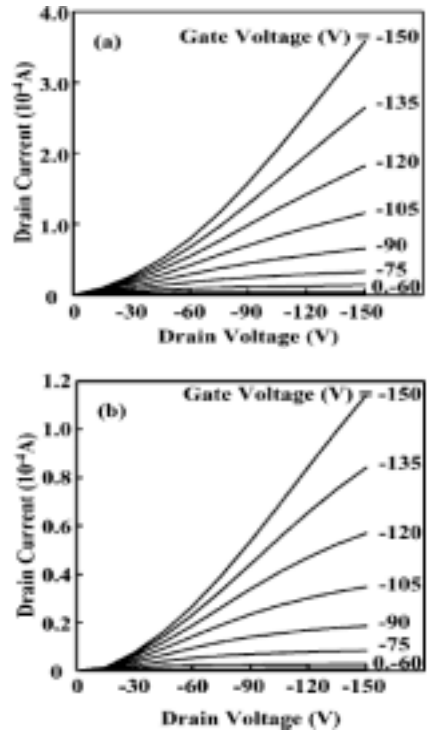


그림 14. Output characteristics: (a) Cr/Au 전극 and (b) Al/Au 전극.

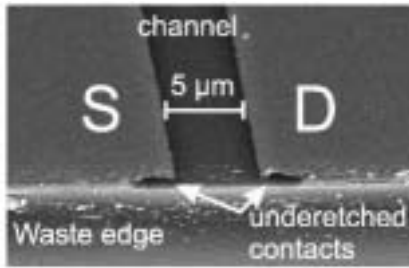


그림 13. Scanning Electron Microscopy(SEM) micrograph of the transistor.

3.3 유기발광 FET에 대한 S/D 전극 효과⁹

Poly(2-methoxy, 5-(2'-ethyl-hexoxy)-1,4-phenylenevinylene) (MEH-PPV)를 active layer로 사용하여, 발광특성을 확인했다. S/D 전극으로 Cr/Au 전극보다 Al/Au 전극의 luminescence 효율이 높음을 확인해 줌으로서, carrier 주입 프로세스가 device 특성에 중요한 역할을 함을 보여주었다.

그림 14에 Cr/Au 전극과 Al/Au 전극의 output characteristics을 나타내었다. 그림 14의 (a)와 (b)의 그림에서 gate 전극의 (-) 전압이 증가하면, drain 전류도 증가함을 알 수 있다. Al/Au 전극의 drain current는 Cr/Au 전극의 drain current 보다 작다. 이는 MEH-PPV로의 정공 주입에는 Cr(4.5 eV)/Au(5.31~5.47 eV) 전극이, Al(4.06~4.26 eV)/Au(5.31~5.47 eV) 전극보다 유리함을 의미한다.¹⁴ 다시 말해서 active layer로 작용하는 organic layer가 p-type일때는, 전극의 work function 값이 클수록 정공 주입에 유리함을 의미한다.

정공 중에서 drain과 gate voltage가 증가하면, orange light

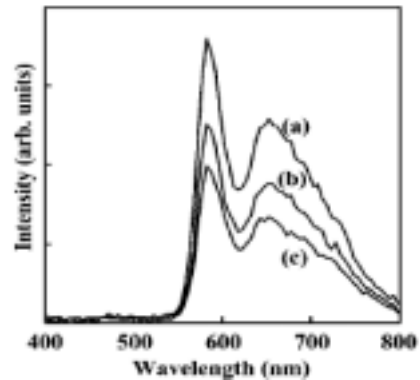


그림 15. Emission spectra at the gate voltage of (a) -180 V, (b) -160 V, and (c) -140 V. The drain voltage was set at -150 V.

emission이 발생하였다.

그림 15에서는 Cr/Au 전극에 대한 emission spectra을 보였다. 본 spectra는 참고문헌 15와 기본적으로 동일한 pattern을 갖는다. Al/Au 전극도 동일한 emission spectra을 보였다.

그림 16에서는 drain voltage를 -150 V로 고정하고, gate voltage를 증가시킬 때 light intensity가 증가함을 보여준다. Al/Au 전극이 Cr/Au 전극보다 강한 발광을 보이는데, 이는 정공과 전자의 balance가 Al/Au 전극 쪽이 우수함을 의미하며, 동일한 조건하에서는 Al/Au 전극에서의 전자 주입이 더 용이함을 의미한다.

이제까지의 실험결과를 토대로, 유기발광 FET의 발광 mechanism을 아래와 같이 추정해 볼 수 있다. ① gate에 negative 전압을 걸어주면, MEH-PPV와 SiO₂ 계면에 정공이 생성됨. ② source 전극을 통해 정공이 유입되며, channel 층을 통해 drain 전극 쪽으로 전달됨. ③ drain 전극에 high voltage가 걸리면, drain 전극에

서 MEH-PPV로 전자가 주입됨. ④ 정공과 전자가 만나 빛이 발생한다.

3.4 저분자 혼성박막을 이용한 유기발광 FET¹⁶

1 wt%–rubrene doped tetraphenylpyrene (TPPy)을 active layer로 사용하는 field effect transistor 구조에서 발광을 확인했다. Rubrene doping과 S/D channel length를 조절함으로써 EL 특성을 향상시킬 수 있음을 확인했으며, EL 특성은 gate voltage를 증가시키면 같이 증가했다. Rubrene doping은 TPPy aggregated morphology (molecular packing, grain size)에 큰 영향을 주는 것 같지는 않았으며, channel length가 짧아지면 carrier 주입이 효율적으로 일어나는 것을 보여준다. Channel length는 0.4~10 μm 였고 channel width는 2 mm였다. S/D 전극으로는 MgAu/Au, Al/Au, Cr/YAu/Au, MgAl/Au 등을 사용하여 EL 양자효율에 대한 전극재료의 효과를 확인했다(그림 17).

TPPy film의 PL peak의 $\lambda_{\text{max}}=455 \text{ nm}$ 이고, 1 wt%–rubrene:TPPy film의 $\lambda_{\text{max}}=559 \text{ nm}$ 이다. 이는 TPPy에서 rubrene으로 효율적인 forster energy transfer가 이루어지고 있음을 의미한다(그림 18). 그림 19에서는 channel length가 10 μm 와 0.4 μm 일때의 I_d - V_d 특성을 보여주고 있다. Channel length가 10 μm 인 그림 19(a)에서는 전형적인 unipolar FET의 특성을

보인다. High V_d region ($\geq -50 \text{ V}$)에서는 I_d saturation을 보이고, low V_d region ($\leq -40 \text{ V}$)에서는 linear I_d - V_d 특성을 보인다.

반면 channel length가 0.4 μm 인 그림 19(b)에서는, 전형적인 unipolar FET 특성과 다른 예외적인 I_d - V_d 특성을 보인다. High

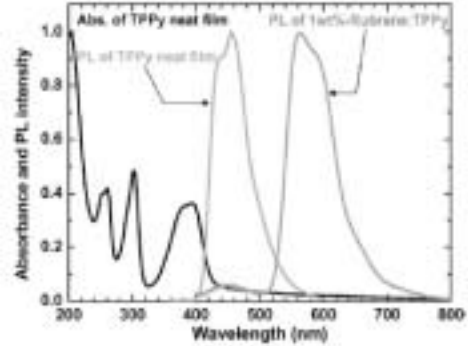


그림 18. Photoluminescence (PL) and absorption spectra for TPPy and 1 wt%–rubrene doped TPPy.

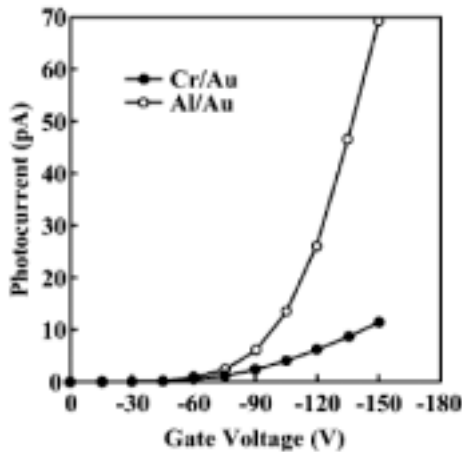


그림 16. Luminescence intensity as a function of the gate voltage.

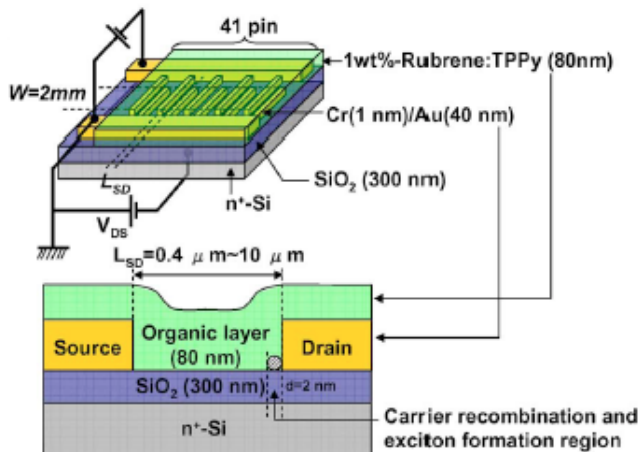


그림 17. Schematic view of the OLEFET.

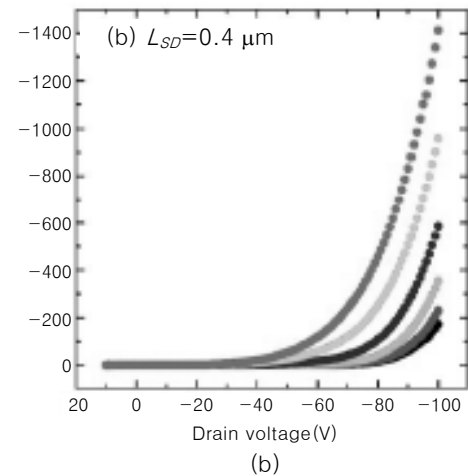
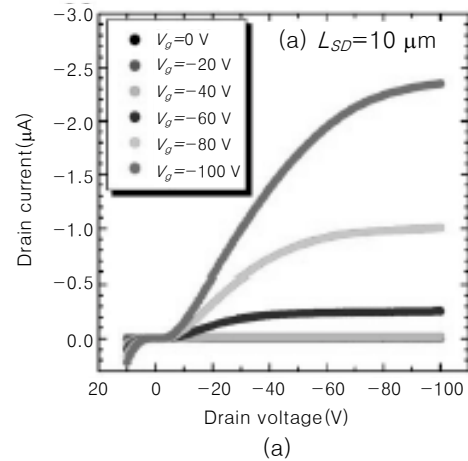


그림 19. Drain current (I_d) vs drain voltage characteristics: (a) $L_{SD}=10 \mu\text{m}$ and (b) $L_{SD}=0.4 \mu\text{m}$ in OLEFETs with 1 wt%–rubrene doped TPPy layer as active layer.

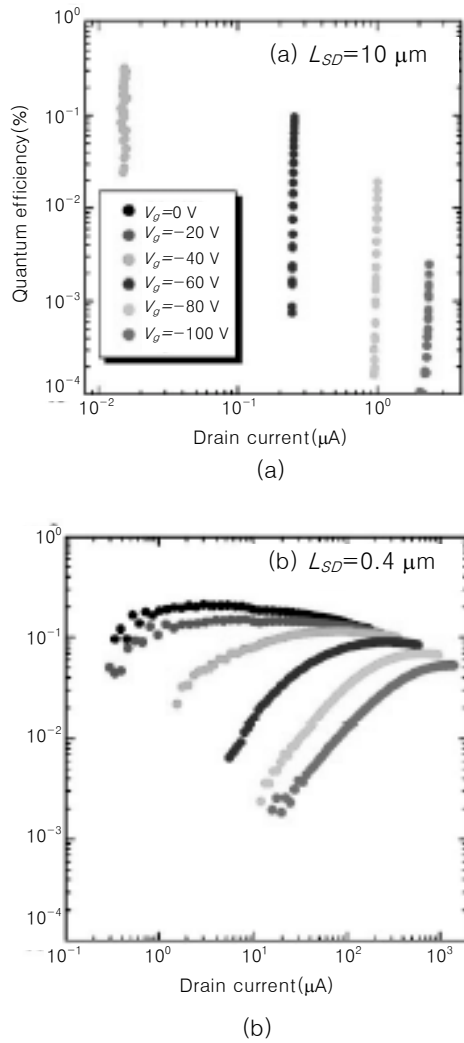


그림 20. External EL quantum efficiency vs drain current characteristics: (a) $L_{SD}=10\ \mu\text{m}$ and (b) $L_{SD}=0.4\ \mu\text{m}$ in OLEFETs with 1 wt%–rubrene doped TPPy layer as active layer.

V_d region에서도 id saturation이 발생하지 않고, 오히려 I_d 값은 급격히 증가한다. 또한 $V_g=0$ 에서도 상당히 높은 I_d 가 발생한다. short channel length에서는 S/D 간의 high electric field에 기인한, S/D에서의 direct carrier injection이 I_d-V_d 특성을 결정하는 주요인자가 된다.

그림 20에서는 channel length에 대한 external EL quantum efficiency와 drain current의 관계를 보여준다. Channel length $10\ \mu\text{m}$ 은, channel length $0.4\ \mu\text{m}$ 보다 훨씬 급격한 external EL quantum efficiency 성장을 보인다(**그림 20(a)**). 위의 현상은 전자의 효율적인 주입과 관계되는데, 전자의 주입을 위해서는 drain current saturation(carrier depletion region이 형성됨)이 필요하고, long channel length $10\ \mu\text{m}$ 에서는 drain current saturation이 발생하였다(**그림 19(a)**). 반면 drain current saturation이 발생하지 않았던, channel length $0.4\ \mu\text{m}$ (**그림 20(b)**)에서도 다소 완만하지만 I_d 증가에 따라 external EL quantum efficiency 성장을 보여, channel length에 따른 발광 mechanism이 서로 차이를 보여주고 있다. Channel length가 짧

아지면 전자주입 효율이 높아져서, 낮은 drain voltage에서도 drain에서 active layer로의 전자 주입 효율이 높아진다. **그림 19**와 **그림 20**에서 보이는 바와 같이 (-) gate voltage를 증가시키면, I_d 는 channel length에 관계없이 증가하나, 외부EL 양자효율은 감소한다. 즉 (-) gate voltage를 증가시키면 $\text{SiO}_2/\text{active layer}$ 층에 정공의 축적이 발생하여 I_d 를 증가시키나, 전자의 축적과 주입은 약화됨을 알 수 있다. 따라서 channel length $0.4\ \mu\text{m}$ 인 디바이스를 이용한 실험에서, (+) gate voltage를 증가 시키면 전자의 주입과 축적을 증가시킬 수 있을 것으로 예상했으나, I_d 에는 변화가 없었고, 외부 EL 양자효율만 약간의 변화가 있었다. 외부 EL 양자효율의 약한 증가는, drain 전극에서 전자의 주입은 조금 증가 되었으나 전자의 축적은 거의 발생하지 않았음을 의미한다. 1 wt%–rubrene:TPPy와 TPPy layer의 전기적 특성을 비교했을 때, I_d-V_d 특성과 mobility는 비슷했으나, 외부 EL 양자효율은 1 wt%–rubrene : TPPy 쪽이 더 높았다. 즉 rubrene doping으로 전자주입이 효율적으로 일어났음을 의미한다. 다양한 전극을 S/D로 사용한 실험에서는 work function 값이 낮은 물질을 전극으로 사용하면, 전자주입 장벽을 낮출 수 있음을 알 수 있었다.

고전압 하에서 channel length가 $10\ \mu\text{m}$ 또는 $3\ \mu\text{m}$ 일 때는 p -type transistor 특성을 보이지만, channel length가 $\leq 1\ \mu\text{m}$ 일 때는 p -type transistor 특성을 보이지 않으며, S/D로부터의 직접적인 carrier 주입이 I_d-V_d 특성을 결정하는 주요인자가 됨을 알 수 있었다. 외부 EL 양자효율을 증가시키기 위해서는 S/D의 channel length 및 work function 값 그리고 active layer의 도전성 유기물 선택의 중요함을 알 수 있다

3.5 플렉서블 기판에 유기발광 FET 제작¹⁷

투명하고 플렉서블한 플라스틱 기판(Mylar, Dupont film)에 active layer로 tetracene을 증착하여 유기발광 FET를 제작하였다. 앞에서 소개한 디바이스와는 조금 다른 구조를 취했다. Mylar film은 기판과 gate insulator의 역할을 동시에 담당했으며, Au를 gate로 사용하고 있다(**그림 21**).

Tetracene은 $0.05\ \text{\AA}/\text{S}$ 에서 $5\ \text{\AA}/\text{S}$ 의 속도로 증착되었다. Mylar 기판에 대해 증착속도를 올리면 grain size는 작아지나, grain 형태와 grain size 분포는 더욱 규칙적이 되었다. 비교를 위해 같은 증착 조건에서 gate insulator로 $\text{SiO}_2(100\ \text{nm})$ 을 증착하였다. SiO_2 에 비해 mylar 기판 쪽의 결정의 크기가 작았는데, 이는 기판의 표면 에너지차에 기인 할 수도 있다. 고정된 V_{gs} 에 대해 (-) V_{ds} 가 증가하면 (-) I_{ds} 도 같이 증가하다가 saturation이 일어났다(**그림 22**). 고정된 V_{gs} 에 대해 (-) V_{ds} 가 증가하면 EL도 같이 증가하였다.

Gate insulator로 사용된 Mylar와 SiO_2 모두 (-) Gate 전압이

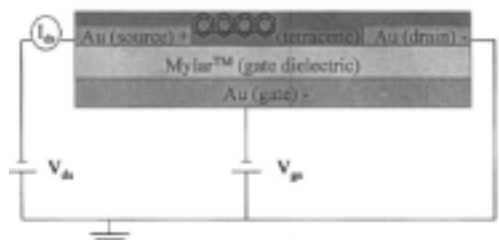


그림 21. Structure of the OLEFET.

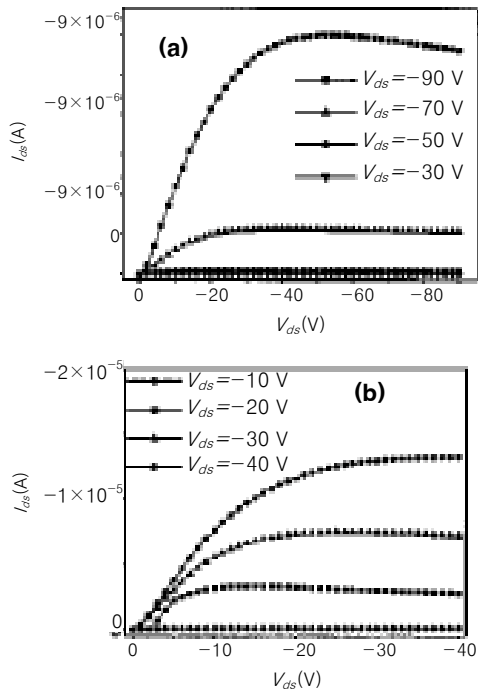


그림 22. Output characteristics at different gate voltages: (a) Mylar gate insulator and (b) SiO₂ gate insulator.

증가하면, I_{ds} 와 EL 값도 상승하였다. 그러나 외부 EL양자효율과 hole FET mobility 모두 SiO₂ 쪽이 1 order 정도 높았다. 그러나 mylar gate insulator와 SiO₂ gate insulator의 두께가 다르고, Channel length가 달랐으며 또한 발광이 일어나는 조건 역시 달랐기에, 위에서 사용한 Gate insulator들에 대해 우월을 판단하는 것은 의미가 없다. Heep 그룹의 설명과는 다르게 SiO₂를 gate insulator로 사용한 underetched된 전극과 nonunderetched된 전극 모두 tetracene으로의 전자주입이 가능하다고 설명하고 있다.

본 논문은 플렉서블한 기판을 사용하여 유기발광 FET 제작을 시도 했는데 의미가 있는 것 같다.

3.6 Ambipolar 유기발광 FET¹⁸

정공 전달 물질로 α -5T를 사용하고, 전자 전달물질로 P13를 사용하여 ambipolar current 특성을 갖는 유기발광 FET를 제작하였다. Light intensity는 V_{ds} 와 V_g 로 조절할 수 있으며, 또한 V_g 는 charge carrier balance를 조절하기 위해서도 사용된다. unipolar 유기발광 FET에서는 발광위치 조절이 어렵다. 그러나 ambipolar 유기발광 FET에서는 gate voltage로 charge carrier의 balance조절과 발광위치의 조절이 가능하여 양자효율을 높일 수 있는 이점이 있다.

분자와 디바이스 구조는 그림 23과 같다.

α -5T와 P13을 같이 증착하여 박막을 만들었다. (-) gate bias V_G 를 가하면, $|V_{Ds}| \leq |V_G|$ 에서 P-channel 특성을 그림 24(a) 3/4에서 확인할 수 있고, $|V_{Ds}|$ 가 증가하면 ambipolar device의 특성인 I_d 값의 급격한 증가를 확인할 수 있다.¹⁹ I_d 값의 급격한 증가는 drain 전극을 통한 전자의 주입에 기인한다. (+) gate bias V_g 에 대해서도 유사한 결과를 얻었다(그림 24(a) 1/4).

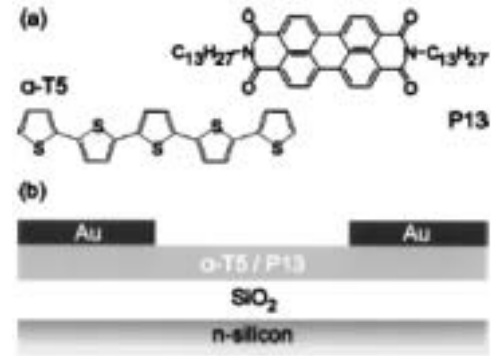


그림 23. (a) Molecular structure of α -5T and P13, (b) Device structure.

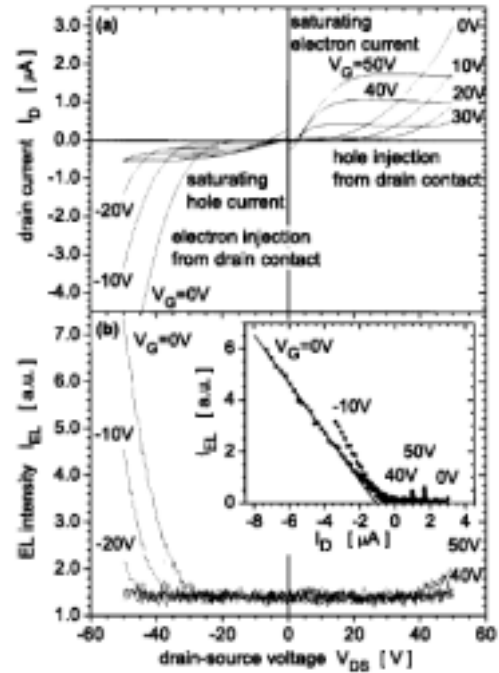


그림 24. Output characteristics and light intensities for negative and positive gate bias.

그림 24(b)에서는 negative drain-sourced와 negative gate voltage에서 발광을 확인 할 수 있었으나, positive drain-source voltage와 positive gate voltage에서는 고전압시 미약한 발광만이 확인되었다. Ambipolar device에서의 발광은 D/S에서 주입되는 전자와 정공의 재결합에 비례했다. Single layer device에 비해 α -5T의 정공 이동도는 10^2 정도 작아졌지만, P13의 전자 이동도는 거의 변화가 없었다.

Top contact S/D 구조로 ambipolar 유기발광 FET를 제작하였다. $V_{ds}=0$ V에서 I_d - V_d 의 불연속성은 gate leakage에 기인한다고 한다.

3.7 S/D 전극이 서로 다른 Ambipolar 유기발광 FET²⁰

서로 다른 2가지 금속을 source(Ca)와 drain(Ag)으로 사용하여, top contact S/D 구조의 ambipolar 유기발광 FET를 만들었다. Polypropylene-co-1-butene으로 gate insulator인 SiNx를 passivation하여 electron trapping site를 감소 시켰으며, 발광위치는 gate 전압으로 조절했다.

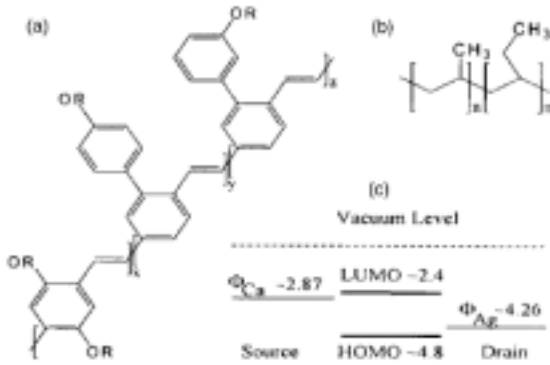


그림 25. Molecular structure (a) SY, (b) PPcB, and (c) Energy level diagram.

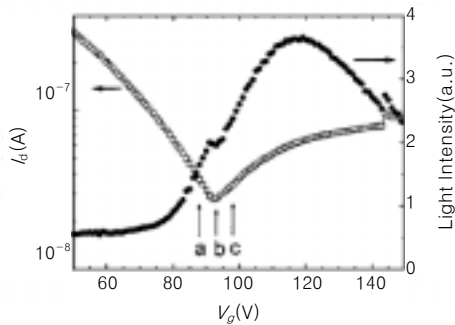


그림 26. Transfer scan for the ambipolar OLEFET.

그림 25에서는 PPV 유도체의 구조식과 SiNx를 passivation 하기 위해 사용한 PPcB의 구조식 그리고 사용된 전극과 PPV의 에너지 레벨을 표시하였다.

그림 26에서는 전달 특성과 Gate 전압에 대한 발광 의존성을 보여주고 있다. 전달 특성은 $V_d=200$ V에 대한 것으로, gate 전압은 0~200 V를 sweep 하였다. $V_g=0$ 일때는 source와 drain 사이에 voltage drop이 없고, drain과 gate 사이에 200 V의 voltage drop이 있으면, gate dielectric에 분극화를 야기하며, high work function인 drain 부근에 hole channel을 유발하는 원인이 된다. V_g 가 증가하면 drain과 gate 간의 voltage drop은 감소하고, hole current의 감소 원인이 된다. 동시에 source와 gate 간의 voltage drop이 증가하여 low work function인 source 부근에 electron channel이 형성된다.

$V_g=90$ V는 정공이 우세한 전류에서 전자가 우세한 전류로 바뀌는 교차점으로 I_d 값의 최소가 된다. 정공 이동도는 3×10^{-4} cm²/V_s이고 전자 이동도는 6×10^{-5} cm²/V_s로, 전자 이동도가 떨어지는 것은 PPcB passivation 이후에도 남아 있던 전자 trap site에 의한 영향으로 판단된다. 발광은 정공이 우세한 영역인 80 V 부근에서 증가하기 시작하여, 전자가 우세한 영역인 120 V에서 최고에 달한다. 이는 재결합에 사용할 전자의 수를 감소시키는 전자 trap site 수를 감소시키기 위해, higher 전자 current가 필요함을 설명한다.

교차점인 $V_g=90$ V에서 정공과 전자 current는 거의 같은 양이 존재하고, 발광효율도 최고가 된다. 발광영역은 2 μm 이하로 source와 drain 사이에 존재하며, $V_g=90$ V 근처의 작은 영역에서

gate voltage가 증가함에 따라 source에서 drain쪽으로 이동하였다. Current crossover가 일어나는 V_g 에서는, 발광이 channel의 거의 중심에서 일어났다.

논문에서 확인할 수 있는 발광의 세기는 그다지 강해 보이지 않으나, V_g 변화에 따른 발광 위치의 이동은 확실하게 구별할 수 있었다. 앞에서 살펴본 unipolar 특성의 유기발광 FET에서는 high work function material을 source 전극으로 사용하였지만, ambipolar 특성을 이용하는 본 논문에서는 high work function material을 drain으로 사용하였다.

4. 결론

Fusion과 synergy effect가 요구되는 시대적 요구에 부응하는 유기발광 FET는, TFT 특성과 EL 특성을 동시에 갖는 새로운 개념의 디바이스로, 디스플레이 분야의 절대 강자로 군림하고 있는 LCD와 경쟁할 수 있는 유력한 디스플레이 중의 하나로 판단된다. 하지만 이 분야의 절대강자로 군림하고 있는 LCD와 경쟁하기 위해서는 디스플레이로서의 우수한 특성 이외에도 생산성과 가격 경쟁력이 필요하다. 또한 소비자의 감성에 호소할 수 있는 새로운 개념의 제품 디자인이 필요하다고 생각된다.

유기발광 FET에 대한 이제까지의 연구는 유기 TFT 구조를 기본으로 하여 전극재료, 전극 간 거리, 전극구조 그리고 active layer로 사용되는 유기도전성 물질을 중심으로 연구 되어 왔다. 유기발광 FET가 경쟁력 있는 제품으로 구체화되기 위해서는 unipolar 특성보다는, ambipolar FET 특성을 갖는 유기발광 FET의 개발이 필요하다고 지적되고 있다. 또한 Device의 전기적 특성 향상을 위해서는 device architecture 못지 않게, 물질 개발이 필요하다고 한다. 현재 유기 EL에서 사용하고 있는 발광성 물질은 EL 특성이 우수하지만, 박막 형성시 amorphous성 구조를 취하는 관계로 TFT 특성이 취약하다. 반면 유기 TFT에서는 박막 형성시 결정성을 중요시 하는 관계로, 유기 TFT에서 사용되는 물질구조는 EL 특성에는 약점으로 작용한다. 따라서 EL 특성과 TFT 특성을 동시에 구현할 수 있는 물질 개발은 매우 중요하다 할 수 있다.

Heep 등을 포함하는 독일 연구 그룹은, 유기발광 FET의 연구에서 큰 발전을 이룩했다. 그들은 underetched 전극을 발광의 원인이 되는 전자주입의 필요조건으로 판단하였다. 그러나 근래 underetched 전극이 없는 상태에서도 발광이 된다는 연구보고도 있었다. 아직은 디바이스 구조와 물질에 대한 연구가 더욱 필요할 시점이라 생각되며, 이제는 유기발광 FET에 맞는 새로운 개념의 구동방식이 연구되어야 할 시점이라고 생각한다.

참고문헌

1. C. Adachi, M. A. Baldo, M. E. Thompson, and S. R. Forrest, *J. Appl. Phys.*, **90**, 5048 (2001).
2. K. Kudo, M. Yamashina, and T. Moriizumi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **23**, 130 (1984).
3. H. Sirringhaus, N. Tessler, and R. H. Friend, *Science*, **280**,

- 1741 (1998).
4. V. Podzorov, S. E. Sysoev, E. Loginova, V. M. Pudalov, and M. E. Gershenson, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 3504 (2003).
 5. J. H. Schön, A. Dodabalapur, Ch. Kloc, and B. Batlogg, *Science*, **290**, 963 (2000).
 6. J. R. Haynes and H. B. Briggs, *Phys. Rev.*, **86**, 647 (1952).
 7. A. Heep, H. Heil, W. Weise, M. Ahles, R. Schmechel, and H. von Seggern, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 157406 (2003).
 8. M. Ahles, A. Heep, R. Schmechel, and H. von Seggern, *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 428 (2004).
 9. T. Sakanoue, E. Fujiwara, R. Yamada, and H. Tada, *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3037 (2004).
 10. T. Oyamada, H. Sasabe, C. Adachi, S. Okuyama, N. Shimoji, and K. Matsushige, *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 093505 (2005)
 11. T. Oyamada and C. Adachi, *Optonews*, **1**, 44 (2005).
 12. H. Müller and H. Bässler, *Chem. Phys. Lett.*, **36**, 312 (1975).
 13. M. Pope and Ch. Swengerg, *Electronic Processes in Organic Crystals and Polymers*, 2nd ed., Oxford University Press, New York, 1999.
 14. D. R. Lide, *Handbook of Chemistry and Physics*, 2nd ed. CRC, Boca Raton, FL, 2001.
 15. D. Braun and A. J. Hegger, *Appl. Phys. Lett.*, **58**, 1982, (1991).
 16. T. Oyamada, H. Uchiuzou, S. Akiyama, Y. Oku, N. Shimoji, K. Matsushige, H. Sasabe, and C. Adachi, *J. Appl. Phys.*, **98**, 074506 (2005).
 17. C. Santato, I. Manunza, A. Bonfiglio, F. Cicoira, P. Coss-eddu, R. Cosseddu, R. Zamboni, and M. Muccini, *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 141106 (2005).
 18. C. Rost, S. Karg, W. Riess, M. A. Loi, M. Murgia, and M. Muccini, *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 1613 (2004).
 19. C. Rost, D. J. Gundlach, S. Karg, and W. Riess, *J. Appl. Phys.*, **95**, 5782 (2004).
 20. J. S. Swensen, C. Soci, and A. J. Heeger, *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 253511 (2005).