

열처리공정에 따른 층상 ReSe₂ 디바이스의 접촉 저항 개선 연구

정 판 검, 이 동 진, 고 필 주[†]

조선대학교, 전기공학과

A Study on the Contact Resistance Improvement in Layered ReSe₂ Device by Annealing Process

Pan Gum Jung, Dong Jin Lee, Pil Ju Ko[†]

Department of Electrical Engineering, Chosun University, Gwangju, Korea
(Received : Feb. 20, 2017, Revised : Mar. 24, 2017, Accepted : Mar. 27, 2017)

Abstract : The two-dimensional(2D) materials, including graphene, h-BN, layered transition metal-chalcogenides (TMC) and layered transition metal-dichalcogenides(TMDCs) are the next generation of the opto-electronic devices. In this paper, we report on the opto-electronic properties of back-gated field effect transistor(FET) based on ~ 200 layered ReSe₂ at before and after annealing. After the annealing, the transition from schottky to ohmic contact in the Ti electrodes and ReSe₂ was observed, and the external quantum efficiency (EQE) of the ReSe₂ device was by increased 10% due to the improvement of the contact resistance between the electrodes and ReSe₂. We obtained an EQE of 18.8% and 8.2% using 532 nm laser excitation, and ReSe₂ device is a good candidate for 2D material based ultra-thin opto-electronic device applications.

Keyword : Rhenium Selenide(ReSe₂), Two-dimensional materials, Transition Metal Dichalcogenides(TMDs), Photodetector, Raman Spectroscopy

1. 서 론

실리콘 기반의 반도체 산업은 기술적 한계에 직면하고 있으며 이러한 문제점을 극복하기 위해 2차원 물질에 대한 연구가 활발하게 연구되어 왔으며, 대표적인 물질로는 그래핀(Graphene), 전이금속 칼코겐화합물(Transition Metal Dichalcogenides, TMDCs), 흑린(Black Phosphorus, BP) 등과 같은 재료들이 있다. 특히, 2차원 결정구조로 sp² 결합을 이루고 있는 그래핀(Graphene)은 우수한 물리적, 광학적, 화학적, 전기적 특성들로 인해 다양한 분야에 적용하기 위한 연구가 진행되고 있다[1-2]. 하지만 그래핀의 제한적 특

성 특성으로 인하여 실질적인 반도체 소자로 응용하는데 한계가 있는 상황이다. 이러한 문제점을 극복하기 위해서 최근에 다양한 크기의(1eV ~ 3eV 가시광선 영역) 밴드갭을 갖는 전이금속 칼코겐화합물(TMDCs: Transition Metal Dichalcogenides MoS₂, WS₂, MoSe₂, WSe₂)과 밴드갭이 큰 육방정계 질화붕소(hexagonal Boron Nitride, hBN)등 반도체 물질의 연구가 활발하게 이루어지고 있다[3-5].

반도체 전이금속 칼코겐화합물은 일반적으로 MX₂의 화학식을 가지며 M은 전이금속 원소(주기율 4~6족 Mo, V, Nb, Re, Ti, Zr, Hf, W, Ta), X는 칼코겐 원소(주기율 6족 Se, S, Te)이다[6-7]. 전이금속 칼코겐 화합물은 두께에 비해 높은 광 흡수율, 높은 엑시톤(Exciton) 결합에너지 등 독특한 특성을 가지고 있어 광소자 응용에 적합하다[8-11]. 특히, 셀렌화 레늄(ReSe₂)은 단일층 전이금속 칼코겐화합물로서 MX₂의 화학식을 가지며 병렬로 배열된 다이아몬드형 사슬을 갖는 원자 적층형 구조를 가진다. 또한, 단일층 ReSe₂는 약 1.3eV, 다층 ReSe₂는 1.1eV의 밴드갭을 가지고

[†]Corresponding Author

성명 : 고 필 주
소속 : 조선대학교 전기공학과
주소 : 광주 동구 필문대로 309 조선대학교
전화 : 062-230-7030
E-mail : pjko@chosun.ac.kr

있어 다양한 분야에 응용 가능하다[12-13]. 이러한 ReSe₂의 광학적, 자기적, 전자적 특성은 변형 공학을 수행함으로써 조정 될 수 있으며, 센서나 Switching 소자, Flexible FET 와 같은 응용분야에 사용 될 수 있다[14]. 본 논문에서는 기계적 박리에 의해 ReSe₂ FET를 제작 하였으며, AFM을 이용하여 ReSe₂의 물리적 두께를 측정하였다. 열처리 전후의 전압-전류 특성과 게이트 전압을 인가하여 FET 특성을 관찰하였다. 또한, ReSe₂ 디바이스에 532 nm 파장의 레이저를 조사하여 열처리 전후의 광 응답성 및 외부양자효율(External Quantum Efficiency, EQE) 특성을 분석하였다.

2. 실험

전사 매체로 Polydimethylsiloxane(PDMS, Dow Corning, Toray Co., Ltd.)를 이용하여 셀렌화 레늄(ReSe₂, HQ graphene)을 실리콘 열산화막(SiO₂, 300 nm)/p형 실리콘(Si) 기판 위에 기계적으로 전사하였다. Ti 전극은 전자빔 증착장치(Electron-beam evaporation)를 사용하여 300 nm 두께의 열적 산화막(Thermally Oxidized Silicon Dioxide)이 증착되어진 실리콘(Si)에 50 nm 두께로 증착 하였다. 전기적 특성은 Semiconductor Parameter Analyzer 4155-A(Hewlett Packard) 및 Probe Station 을 사용하여 측정하였으며, ReSe₂ 소자의 표면을 관찰하기 위해 주사 전자 현미경(Scanning Electron Microscopy, SEM, Hitachi)을 활용하였다. ReSe₂의 두께 측정과 Raman 분석은 각각 PSIA corp XE-200 AFM과 514 nm 아르곤 레이저를 사용하여 상온에서 Raman Spectroscopy(Horiba Jobin Yvon Technology, LabRAM HR) 특성을 분석 하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1-(a)는 셀렌화 레늄(ReSe₂) 기반의 FET 구조의 개략도이며 그림 1-(b)는 PDMS를 통해 전극(Ti)에 증착된 ReSe₂의 SEM 이미지로 소스-드레인 채널의 길이는 20 μm 이다. ReSe₂의 두께는 그림 1-(c)에 나타난 것처럼 AFM을 사용하여 160 nm의 두께를 확인 할 수 있었으며, 이는 200층 정도의 ReSe₂에 해당한다. 그림 1-(d)는 514 nm 레이저로 160 nm의 두께를 가진 샘플로부터 라만 스펙트럼을 확인하였고, 520 cm^{-1} 에서 Si 피크를 사용하여 보정 하였다. ReSe₂의 라만 피크는 100~300 cm^{-1} 범위에서 보고되었다[15-18]. ReSe₂는 A_{1g} mode 에서 159 cm^{-1} , E_{1g} mode 에서 124.5 cm^{-1} 의 라만 피크를 확인 할 수 있었으며 이는 벌크 또는 다층의 ReSe₂가 가지고 있는 라만 피크와 일치하는 것을 나타낸다[15]. 또한, 고주파 범위(284 및 294 cm^{-1})에서 상대적으로 낮은 세기의 피크를 나타내었다.

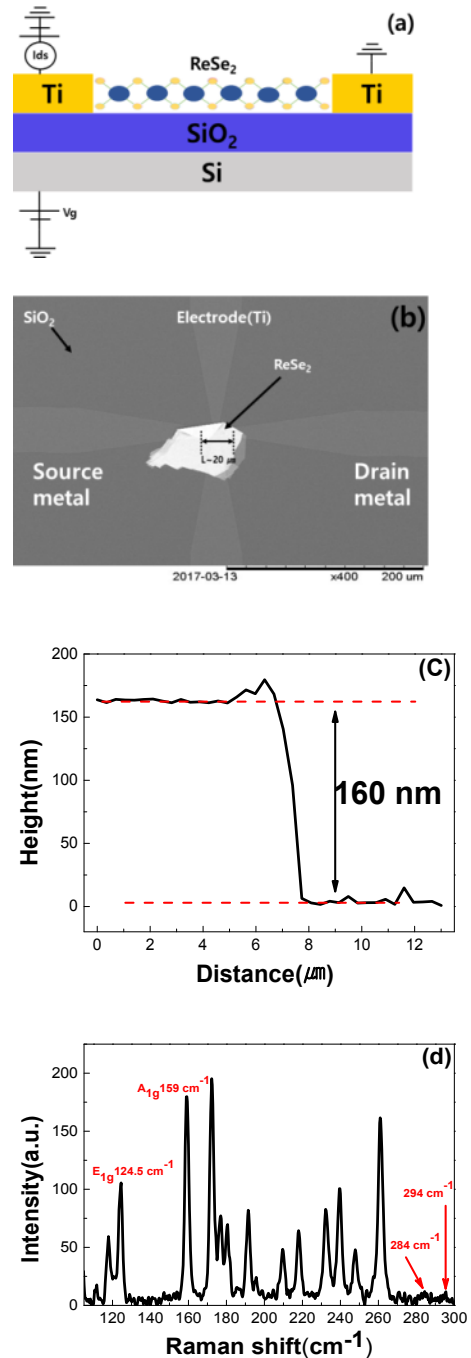


Figure 1. (a) Schematics illustrating the FET device's fabrication procedures; (b) scanning electron microscopy images of the ReSe₂ flake; (c) the flake thickness determined by the topographic analysis; and (d) Raman spectrum of the phototransistor.

ReSe₂ 소자를 기반으로 FET를 400°C에서 30분 동안 열처리를 진행하였으며, 그림 2는 열처리 전후의 전기적 특성을 보여주는 그래프이다. 소스와 드레인 사이의 전압은 -15 V ~ 15 V 구간에서 V_{ds}-I_d 전기적 특성을 보여주고 있으며 열처리 전 V_{ds}-I_d 특성이 비선형임을 볼 수 있는데, 이것은 불완전한 오믹접합이 형성되었음을 의미하며, 열처리에 의해 선형적인 전류-전압 특성을 보였다.

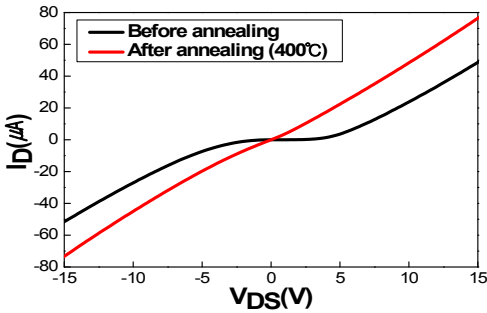


Figure 2. Before and after heat treatment the of Vds-Id curves.

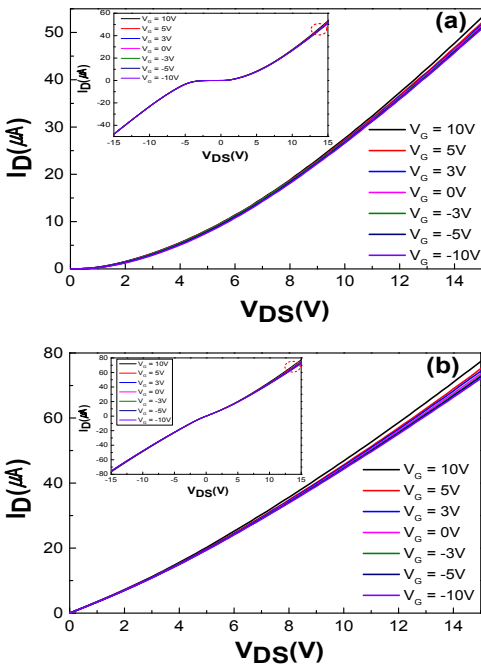


Figure 3. The process of (a), before heat treatment, and that of (b), after heat treatment: drain-source voltage dependence of the drain current at different values of the gate voltage of a ReSe₂-based phototransistor, inset: V_{ds}-I_d characteristic at a different gate voltage.

그림 3-(a),(b)는 열처리 전후 ReSe₂ 소자의 V_{ds}-I_d 곡선으로 드레인-소스 사이의 전압은 0 V ~ 15 V 까지 인가하고 게이트 전압을 -10 V ~ 10 V 까지 변화 시킨 결과이다. 게이트 전압이 + 방향으로 증가함에 따라 전류량이 순차적으로 증가하는 것을 확인 할 수 있었다. 또한, 삽입된 그림은 드레인-소스 사이의 전압은 -15 V ~ 15 V 까지 인가하는 동시에 게이트 전압은 -10 V ~ 10 V 까지 전압을 변화시키면서 드레인 전류를 측정 한 결과이며, 열처리 후 금속 전극과 드레인-소스 사이의 접촉저항이 감소하여 쇼트키 접합에서 오믹 접합으로 열처리 전보다 대칭적인 I-V 결과를 얻을 수 있었다.

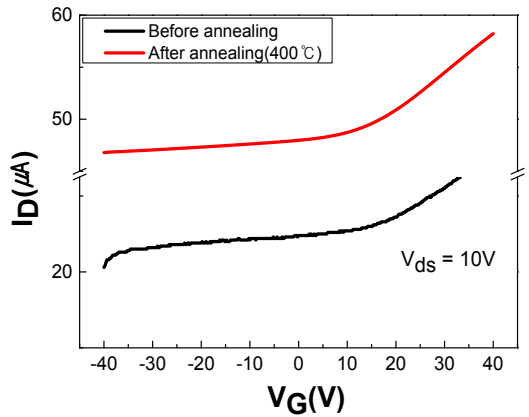
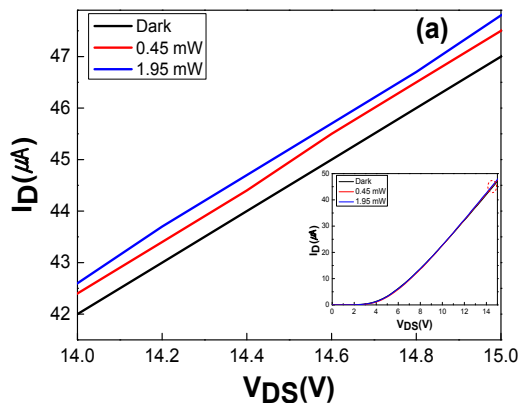


Figure 4. Before and after heat treatment of the drain current versus the gate voltage.

그림 4는 ReSe₂의 전기적 특성을 보기 위해 V_G-I_D sweep을 측정하였다. 드레인-소스간의 전압은 10 V이며 게이트 전압을 -40 V ~ 40 V 까지 sweep 하였다. 그림에서 보듯이 열처리 후 드레인 전류값이 증가 하였으며, 그림 3과 그림 4의 결과를 통해 ReSe₂가 n-type 특성을 가지고 있는 것을 확인 할 수 있었다.



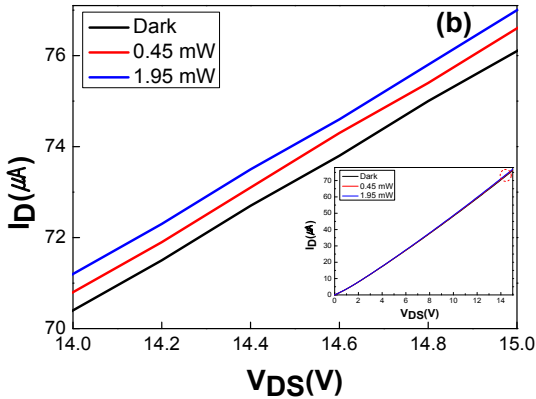


Figure 5. Before and after heat treatment of the laser power dependence of the drain current versus the drain-source voltage at zero gate voltage.

그림 5-(a)는 Dark 상태에서 ReSe₂ 소자에 0.45 mW, 1.95 mW의 레이저를 조사하였다. 소스와 드레인 사이의 전압이 14 V ~ 15 V 구간에서 V_{ds} - I_d 열처리 전 특성 곡선으로 레이저 출력값이 증가 할수록 드레인 전류는 증가 하였으나, 삽입된 그림에서 보듯이 비선형으로 완벽한 저항성 접촉이 형성되지 못했음을 나타내며, 그림 5-(b)는 V_{ds} - I_d 특성 곡선으로 완전한 선형으로 열처리 후 저항성 접촉의 형성 및 오믹 특성을 확인 할 수 있었다.

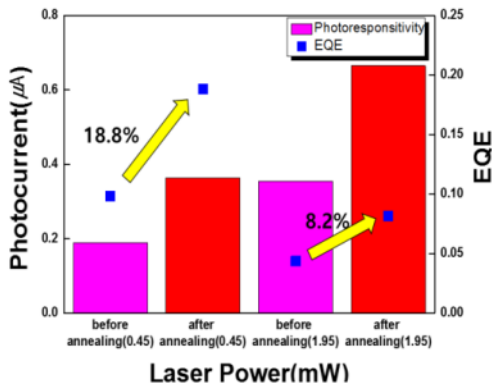


Figure 6. The photoresponsivity in the function of the laser power and the external quantum efficiency in the function of the laser power.

그림 6은 ReSe₂ 소자에 0.45 mW, 1.95 mW의 532nm 파장의 레이저를 조사 하였다. 0.45 mW의 레이저 출력에 따른 광응답성은 열처리 전 0.1893 μ A에서 열처리 후 0.3635 μ A으로 0.1742 μ A 정도 증가 하였으며, 1.95 mW의 레이저 출력에 따른 광응답성은 열처리 전 0.3548 μ A에서 0.6648 μ A로 열처리 후

0.3092 μ A 정도 증가하였다. 광응답성의 증가는 ReSe₂의 밴드갭 에너지보다 큰 에너지에 의해 전자-홀 쌍이 형성 되었기 때문이다. 여기서 Dark는 빛을 조사 하지 않았을 때의 전류를 I_{dark} , Photo current는 빛을 조사했을시 전류량을 I_{light} 라고 정의하면, $I_{ph} = I_{light} - I_{dark}$ 로 정의 할 수 있으며, 레이저 출력(P)이 증가함에 따라 I_{ph} 도 증가하게 된다. 또한, 외부양자효율(External Quantum Efficiency, EQE)은 입사하는 광자수의 검출되는 광유발 캐리어 수이며, $EQE = hcR_{\lambda} / e\lambda$ 에 의해 계산되어지며 여기서 h는 플랑크 상수, e는 기본 전하, c는 광속 및 λ 여기(측정) 파장이다[19]. 0.45 mW의 레이저 출력에 의한 외부양자효율(External Quantum Efficiency, EQE)은 열처리 전 9.8 %에서 열처리 후 18.8%로 1.95 mW의 레이저 출력에 의한 외부양자효율은 열처리 전 4.3%에서 8.2%로 증가하였다.

4. 결론

본 논문에서는 2차원 물질인 셀렌화 레늄(ReSe₂)을 기계적 박리에 의해 FET를 제작하여 열처리 전후의 전기적 특성 및 광학적 특성에 대해 분석 하였다. 160 nm 두께의 ReSe₂ FET는 V_{ds} - I_d 특성 곡선을 통해 열처리 후 저항성 접촉 형성 및 오믹 접합을 형성하여 열처리 전보다 개선된 I-V 결과를 확인 하였으며, 라만 스펙트럼 분석을 통해 ReSe₂는 A_{1g} mode에서 159 cm^{-1} , E_{1g} mode에서 124.5 cm^{-1} 의 라만 피크를 관찰 할 수 있었다. 광특성 분석을 통해 열처리 전후의 광응답성은 1.95 mW의 레이저 출력에서 0.3092 μ A, 외부양자효율(External Quantum Efficiency, EQE)은 0.45 mW의 레이저 출력에서 10% 정도 증가하는 것을 확인 하였다. 광응답성의 증가는 ReSe₂의 밴드갭(1.3 eV) 에너지보다 큰 에너지 532 nm 레이저(2.3 eV)에 의해 전자-홀쌍이 형성 되었기 때문이다. 이러한 결과들은 2차원 소재 디바이스의 다양한 분야에 응용이 가능하다.

감 사

이 논문은 2016학년도 조선대학교 학술연구비의 지원을 받아 연구되었음.

참고문헌

- Novoselov, K. S., and V. I. Fal. "Ko, L. Colombo, PR Gellert, MG Schwab and K. Kim." Nature 490(7419), 192-200 (2012).
- Novoselov, Kostya S., et al. "Electric field effect in atomically thin carbon films." science 306(5696), 666-669 (2004).
- Wang, Qing Hua, et al. "Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides." Nature nanotechnology 7(11), 699-712 (2012).

4. Yun, Won Seok, et al. "Thickness and strain effects on electronic structures of transition metal dichalcogenides: 2H-MX₂ semiconductors (M= Mo, W; X= S, Se, Te)." *Physical Review B* 85(3), 033305 (2012).
5. Geim, Andre K., and Irina V. Grigorieva. "Van der Waals heterostructures." *Nature* 499(7459), 419-425 (2013).
6. Withers, Freddie, et al. "Electron transport of WS₂ transistors in a hexagonal boron nitride dielectric environment." *Scientific reports* 4 (2014).
7. Abderrahmane, A., et al. "High photosensitivity few-layered MoSe₂ back-gated field-effect phototransistors." *Nanotechnology* 25(36), 365202 (2014).
8. Mak, Kin Fai, et al. "Atomically thin MoS₂: a new direct-gap semiconductor." *Physical Review Letters* 105(13), 136805 (2010).
9. Ramasubramaniam, Ashwin. "Large excitonic effects in monolayers of molybdenum and tungsten dichalcogenides." *Physical Review B* 86(11), 115409 (2012).
10. Britnell, Liam, et al. "Strong light-matter interactions in heterostructures of atomically thin films." *Science* 340(6138), 1311-1314 (2013).
11. Ganatra, Rudren, and Qing Zhang. "Few-layer MoS₂: a promising layered semiconductor." *ACS nano* 8(5), 4074-4099 (2014).
12. Jariwala, Bhakti, et al. "Synthesis and characterization of ReS₂ and ReSe₂ layered chalcogenide single crystals." *Chemistry of Materials* 28(10), 3352-3359 (2016).
13. Yang, Shengxue, et al. "Layer-dependent electrical and optoelectronic responses of ReSe₂ nanosheet transistors." *Nanoscale* 6(13), 7226-7231 (2014).
14. Yang, Shengxue, et al. "Tuning the optical, magnetic, and electrical properties of ReSe₂ by nanoscale strain engineering." *Nano letters* 15(3), 1660-1666 (2015).
15. Wolverson, Daniel, et al. "Raman spectra of monolayer, few-layer, and bulk ReSe₂: an anisotropic layered semiconductor." *Acs Nano* 8(11), 11154-11164 (2014).
16. Hafeez, Muhammad, et al. "Chemical Vapor Deposition Synthesis of Ultrathin Hexagonal ReSe₂ Flakes for Anisotropic Raman Property and Optoelectronic Application." *Advanced Materials* 28(37), 8296-8301 (2016).
17. Taube, A., et al. "Temperature dependence of Raman shifts in layered ReSe₂ and SnSe₂ semiconductor nanosheets." *Applied Physics Letters* 107(1), 013105 (2015).
18. Kang, Byunggil, et al. "Ambipolar transport based on CVD-synthesized ReSe₂." *2D Materials* 4(2), 025014 (2017).
19. Ko, Pil Ju, et al. "Thickness dependence on the optoelectronic properties of multilayered GaSe based photodetector." *Nanotechnology* 27(32), 325202 (2016).