

PMMA-HfO_x 유-무기 하이브리드 저항변화 메모리 제작

백일진, 조원주^a

광운대학교 전자재료공학과

Fabrication of PMMA-HfO_x Organic-Inorganic Hybrid Resistive Switching Memory

Il-Jin Baek, Won-Ju Cho^a

Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 01897, Korea

(Received January 28, 2016; Revised January 31, 2016; Accepted February 23, 2016)

Abstract: In this study, we developed the solution-processed PMMA-HfO_x hybrid ReRAM devices to overcome the respective drawbacks of organic and inorganic materials. The performances of PMMA-HfO_x hybrid ReRAM were compared to those of PMMA- and HfO_x-based ReRAMs. Bipolar resistive switching behavior was observed from these ReRAMs. The PMMA-HfO_x hybrid ReRAMs showed a larger operation voltage margin and memory window than PMMA-based and HfO_x-based ReRAMs. The reliability and electrical instability of ReRAMs were remarkably improved by blending the HfO_x into PMMA. An Ohmic conduction path was commonly generated in the LRS (low resistance state). In HRS (high resistance state), the PMMA-based ReRAM showed SCLC (space charge limited conduction). the PMMA-HfO_x hybrid ReRAM and HfO_x-based ReRAM revealed the Pool-Frenkel conduction. As a result of flexibility test, serious defects were generated in HfO_x film deposited on PI (polyimide) substrate. On the other hand, the PMMA and PMMA-HfO_x films showed an excellent flexibility without defect generation.

Keywords: ReRAM, Organic-Inorganic, Hybrid, Solution-process, Flexible electronics

1. 서 론

최근, 저항변화 메모리는 간단한 구조, 고집적성 그리고 CMOS 공정과의 높은 호환성의 장점을 가지고 있어 DRAM이나 플래시 메모리 등의 물리적 한계를 극복할 수 있는 차세대 메모리로서 주목 받고 있다 [1]. 특히, 용액공정을 이용한 저항변화 메모리 제작기술은, 진공 장비 기반 방법에 비해 낮은 공정비용, 공정시간 그리고 대면적화가 가능한 장점 등을 바탕으로 다양한 연구가 진행되고 있다 [2]. 한편, 기존의 저항변화 메모리의 저항

변화 층으로 많이 연구되던 무기재료들은, 유연기판에 적용하게 되면 기계적·물리적 결함이 발생하여 플렉시블 전자장치 (flexible electronics)에 응용하기 어렵다는 문제를 갖고 있다. 따라서, 최근 유연기판에도 적용이 가능한 유기재료를 이용한 메모리에 대한 연구가 증가하고 있다. 유기재료는 박막의 유연성, 낮은 가격, 대면적화 및 경량이라는 장점으로 유기발광 다이오드, 광전소자, 센서, 박막 트랜지스터 및 메모리 등의 다양한 전자소자에 응용되어 왔다 [3-7]. 그러나 온도 및 습도 등의 주변 환경에 대해서 취약한 안정성은 유기재료를 저항변화 메모리에 적용하는데 제약이 되고 있다 [8]. 이와 같은 문제를 해결하기 위한 방안으로 유기 메모리 소자의 유기물질 층에 나노 물질들을 이용하여 저항변화 메모리를 구현하는 연구들이 보고되고 있다 [9,10]. 하지만, 유기 메모리 소자의 신뢰성 및 재현성은 아직 개선되어야 할 부분이 많이 있으며 보다 많은 연구가 필요하다.

a. Corresponding author; chowj@kw.ac.kr

Copyright ©2016 KIEEME. All rights reserved.
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

따라서 본 논문에서는, 무기재료와 유기재료가 가지는 각각의 단점을 극복하기 위하여 용액공정을 이용하여 유-무기재료가 혼합된 하이브리드형의 저항변화 메모리를 구현하였다. 유기물로는 높은 기계적 강도 및 빛에 대한 내구성을 갖는 장점을 가지고 저항변화 메모리에 많이 연구되고 있는 PMMA (poly methylmethacrylate)를 사용하였으며, 무기물로는 높은 유전율을 가지고 전기적 특성이 우수하여 초미세 트랜지스터의 게이트 절연막이나 고집적 DRAM의 캐패시터와 같이 첨단 반도체 소자에 많이 활용되고 있는 HfO_x 를 사용하였다 [7,11]. 제작된 PMMA- HfO_x 하이브리드 저항변화 메모리 소자의 전기적 특성, 메모리 동작 특성, 내구성 및 유연성을 검증하기 위하여 PMMA 또는 HfO_x 단일물질로 저항변화 메모리 소자들을 제작하여 비교 평가하였다.

2. 실험 방법

유-무기 혼합 박막을 이용한 하이브리드 저항변화 메모리 소자를 제작하기 위하여 (100) 방향 p-type Si 기판 위에, 열 산화 방법으로 실리콘 산화막 300 nm 성장시켰다. 하부 전극으로 Ti와 Pt를 각각 10 nm와 100 nm의 두께로 e-beam evaporator를 이용하여 열산화막 위에 순차적으로 증착하였다. 그 위에 2% PMMA (MicroChem, 950PMMA) 용액과 5% HfO_2 (Kojundo Chemical, Hf-05) 용액을 1:1의 비율로 교반기를 이용하여 상온에서 2 시간 동안 충분히 혼합하여 1,000 rpm 10 초, 5,000 rpm 30 초의 조건으로 PMMA- HfO_x 하이브리드 막을 스핀 코팅하였고, 비교를 위하여 동일한 조건으로 PMMA와 HfO_x 단일막도 별도로 스핀 코팅하였다. 용액공정으로 형성된 절연막 내부의 불순물을 제거하기 위하여 180°C에서 30분 동안 열처리한 다음, PMMA- HfO_x , PMMA, HfO_x 의 두께가 각각 230, 430, 40 nm로 형성된 것을 확인하였다. 다음으로 상부 전극을 형성시키기 위해 쉐도우 마스크를 이용하여 직경이 200 μm 의 Ti 전극을 RF magnetron sputter를 이용하여 100 nm의 두께로 증착하였다. 그림 1에 제작된 소자의 구조를 나타내었다.

제작된 소자의 전기적 특성과 메모리 동작을 평가하기 위해 Agilent 4156B precision semiconductor parameter analyzer를 이용하여 인가된 전압에 대한 전류의 변화 (I-V) 특성을 측정하였다. 모든 특성 평가는 빛과 전기적인 잡음을 피하기 위하여 암상자 (dark-box) 안에서 실시하였다.

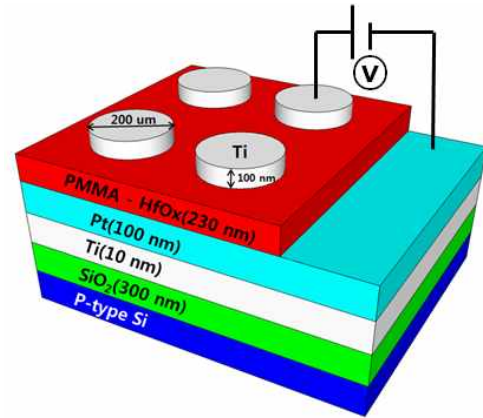


Fig. 1. Schematic representation of HfO_x -PMMA hybrid ReRAM devices.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 제작된 PMMA, PMMA- HfO_x 그리고 HfO_x 저항변화 메모리의 전류-전압 곡선(I-V curve)을 나타낸다. 그림 1과 같이 하부전극은 접지한 상태에서 상부전극에 인가된 전압을 스윙하면서 메모리 특성을 측정하였다. 먼저 상부전극에 양(positive)의 전압을 인가하면, 작은 전류가 흐르는 높은 저항상태 (high resistance state; HRS)를 보이다가 일정한 크기 이상의 전압이 인가되면 큰 전류가 흐르는 낮은 저항상태 (low resistance state; LRS)로 변화한다. 이 과정을 'set 동작'이라고 하고 이때의 전압을 'set 전압'이라고 정의한다.

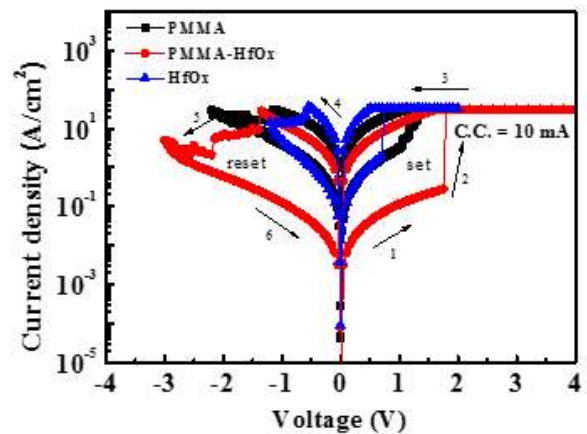


Fig. 2. Typical bipolar resistive switching behaviors of solution-processed PMMA, PMMA- HfO_x and HfO_x ReRAMs.

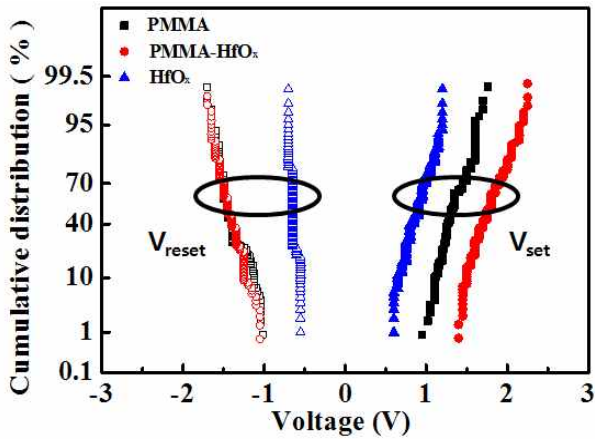


Fig. 3. Cumulative operation voltage distribution of ReRAM devices at room temperature.

다음으로 음(negative)의 전압을 상부전극에 인가하면, set 상태를 유지하다가, 일정 전압 이상의 바이어스가 인가되면 다시 전류가 급격하게 감소하며 높은 저항 상태로 변화한다. 이 과정을 ‘reset 동작’ 그리고 이때의 전압을 ‘reset 전압’이라고 한다.

Reset 동작 이후 다시 양의 전압을 인가하면 set 동작이 일어난다. 이처럼 인가되는 전압의 극성과 크기에 따라서 set과 reset 동작이 계속 반복되며, 저항변화 메모리는 이 원리를 이용하여 메모리 동작을 보이게 된다 [12]. 본 실험에 사용된 모든 소자들은 전형적인 양극성 저항변화(bipolar resistive switching) 메모리 동작을 가진다는 것을 확인할 수 있다.

그림 3은 각 소자의 set 전압 (V_{set})과 reset 전압 (V_{reset})의 분포를 나타낸다. HfO_x 저항변화 메모리의 V_{set} 과 V_{reset} 은 0.6~1.2 V와 -0.55~-0.7 V의 범위에 있었고 각각의 표준편차는 0.169 V와 0.05 V 이었다. PMMA 저항변화 메모리는 $V_{set}=0.95\sim 1.76$ V, $V_{reset}=-1.02\sim -1.7$ V에서 각각 0.177 V와 0.154 V의 표준편차를 가졌다. 한편, PMMA- HfO_x 하이브리드 저항변화 메모리는 $V_{set}=1.4\sim 2.25$ V, $V_{reset}=-1.05\sim -1.7$ V에서 각각 0.217 V와 0.172 V의 표준편차를 가졌다. 따라서, PMMA와 HfO_x 기반의 단일 저항변화 메모리 소자는 각각 1.15 V와 1.97 V의 동작 전압 마진을 가졌지만, PMMA- HfO_x 하이브리드 메모리는 2.45 V의 보다 큰 동작 전압 마진을 가지는 것을 확인하였다.

그림 4는 0.2 V에서의 읽기 전압(V_{read})에서 평가한 각 소자의 LRS와 HRS 저항분포를 나타낸다. PMMA

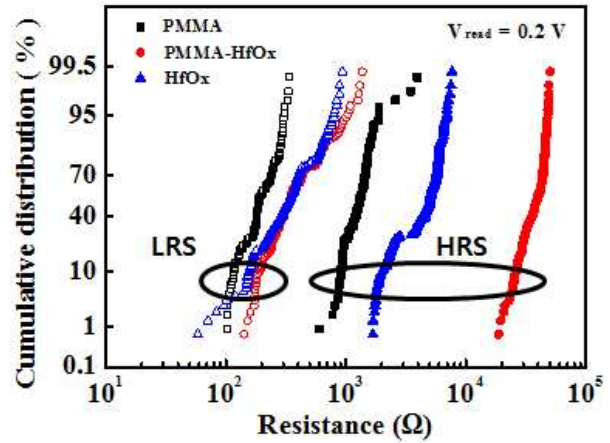


Fig. 4. Cumulative LRS and HRS distribution of ReRAM devices at room temperature.

단일 저항변화 소자의 HRS와 LRS 평균저항은 각각 1.32×10^3 Ω (표준편차, $SD=4.41\times 10^2$ Ω)와 2.03×10^2 Ω ($SD=6.27\times 10^1$ Ω)이었다. HfO_x 단일 저항변화 소자의 경우, HRS와 LRS 평균저항은 각각 4.53×10^3 Ω (표준편차, $SD=1.64\times 10^3$ Ω)와 3.72×10^2 Ω ($SD=2.01\times 10^2$ Ω)이었다. 한편, PMMA- HfO_x 하이브리드 저항변화 소자는 각각 3.73×10^4 Ω (표준편차, $SD=7.93\times 10^3$ Ω)와 4.22×10^2 Ω ($SD=2.59\times 10^2$ Ω)의 HRS와 LRS의 평균저항을 가졌다. 따라서, PMMA, HfO_x , PMMA- HfO_x 각 소자가 가지는 on/off 저항의 비는 각각 6.5, 12.2, 88.5로 PMMA- HfO_x 하이브리드 저항변화 소자의 메모리 윈도우가 가장 큰 것을 확인하였다.

표 1에 각 ReRAM 소자의 HRS와 LRS 저항, 메모리 윈도우(on/off ratio), 그리고 set 및 reset 동작 전압(V_{set} , V_{reset})의 평균값과 표준편차(standard deviation, SD)를 정리하였다.

Table 1. Electrical parameters of solution-processed PMMA, PMMA- HfO_x , and HfO_x ReRAMs.

	PMMA	PMMA- HfO_x	HfO_x
HRS [Ω]	1.32×10^3	3.73×10^4	4.53×10^3
(SD)	(4.41×10^2)	(7.93×10^3)	(1.64×10^3)
LRS [Ω]	2.03×10^2	4.22×10^2	3.72×10^2
(SD)	(6.27×10^1)	(9.84×10^2)	(2.01×10^2)
On/off ratio	6.53	88.54	12.16
V_{set} [V]	1.35	1.77	0.89
(SD)	(0.18)	(0.22)	(0.17)
V_{reset} [V]	-1.40	-1.38	-0.64
(SD)	(0.17)	(0.13)	(0.05)

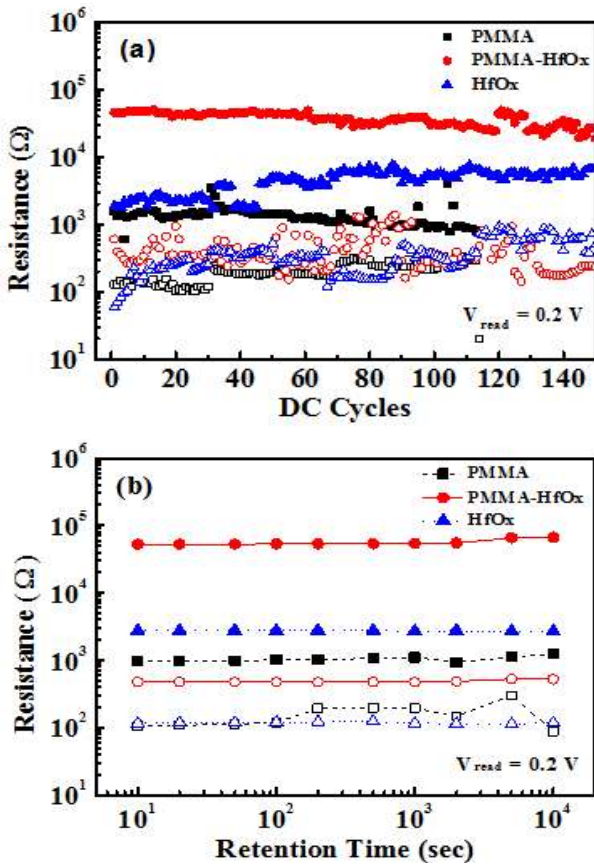


Fig. 5. (a) Endurance characteristics and (b) retention characteristics of PMMA, HfO_x and PMMA-HfO_x ReRAM devices.

PMMA, PMMA-HfO_x 그리고 HfO_x 저항변화 메모리의 신뢰성을 평가하기 위하여 각 소자의 내구성(endurance)과 데이터 유지능력(data retention)을 평가하였다.

그림 5(a)의 내구성 테스트는 소자의 절연파괴(break-down)를 막기 위하여 Agilent 4156B precision semiconductor parameter analyzer의 허용전류(compliance)를 10 mA로 고정한 다음, 직류(DC) 전압을 스윕하는 방법으로 평가하였다. 그 결과, PMMA 저항변화 메모리의 경우에는 114회에서 저항스위칭 불량이 발생한 반면, PMMA-HfO_x와 HfO_x 저항변화 메모리는 150회 이상의 반복동작에도 불량이 발생하지 않고 안정적으로 동작하는 것을 확인하였다. 따라서, 유기재료인 PMMA는 뛰어난 유연성에도 불구하고 전기적 스트레스에 대해서 신뢰성이 좋지 못하다는 것을 알 수 있다.

한편, 그림 5(b)의 데이터 유지능력(data retention)

테스트 결과에서는 PMMA 저항변화 메모리는 200 초 이하에서 저항스위칭 불량이 발생하였지만, HfO_x

저항변화 메모리는 10,000초 동안 안정적으로 HRS와 LRS를 유지하였다. 또한, PMMA에 HfO_x를 혼합시킨 PMMA-HfO_x 저항변화 메모리의 경우에도 10,000초 동안 매우 안정적으로 HRS와 LRS를 유지하였다. LRS에서 흐르는 높은 전류로 인하여 발생하는 주울 열(Joule heating)은 저항변화 메모리를 열화시킨다. 그리고 유기재료는 무기재료에 비해 열에 취약하기 때문에 열화가 더 빠르게 진행되어 수명이 급격히 감소한다. 따라서 불안정한 유기물질인 PMMA와 전기적·열적으로 안정한 무기물질인 HfO_x를 혼합시킴으로써 저항변화 메모리의 안정성 및 수명을 크게 개선시켰다.

또한, 저 저항 상태(LRS) 및 고 저항 상태(HRS)에서 각 소자의 전류 전도기구(conduction mechanism)를 확인하기 위하여 I-V 곡선을 log-log 스케일로 그림 6에 나타냈다. 그림 6(a)의 PMMA ReRAM 소자의 경우, LRS에서 I-V 커브는 1.04의 선형적인 기울기로 아래 관계식 (1)의 오믹(ohmic) 전도기구를 따른다 [13].

$$J_{ohm} = qn\epsilon\mu \frac{V}{d} \quad (1)$$

여기서 J 는 전류밀도, q 는 전하량, n 은 열평형상태에서 자유전자의 농도, ϵ 는 유전상수, μ 은 전자의 이동도, V 는 인가한 전압, d 는 박막의 두께를 나타낸다.

한편, HRS에서는 전압이 증가함에 따라 I-V 커브의 기울기가 변하고 있으며, 전도 메커니즘이 달라진다는 것을 보여준다. 즉, PMMA ReRAM은 낮은 전압에서는 1.08의 선형적인 기울기를 보이지만 전압이 증가함에 따라 1.85으로 2에 가까운 기울기를 보이며, 이는 전압이 커짐에 따라서 오믹 전도에서 식 (2)와 같은 전형적인 공간전하 제한전류(space charge limited conduction, SCLC) 기구를 따른다는 것을 보여준다 [14].

$$J_{trap-filled} = \frac{9}{8} n\epsilon\mu \left[\frac{V^2}{d^3} \right] \quad (2)$$

그림 6(b)와 (c)의 PMMA-HfO_x 소자와 HfO_x 소자의 경우, LRS 상태에서는 PMMA 소자와 마찬가지로 오믹 전도기구를 보이지만, HRS 상태의 낮은 전압에서는 각각 1.02의 기울기를 가지지만 높은 전압에서는 각각 1.44와 1.35의 기울기를 가진다.

그림 6(b)와 (c)에 삽입된 그림은 높은 전압 영역에서 HRS의 I-V 커브를 PF (poole-frenkel) 전도식으로 피팅한 $\ln(I/V) - V^{1/2}$ 관계 그래프를 나타내며,

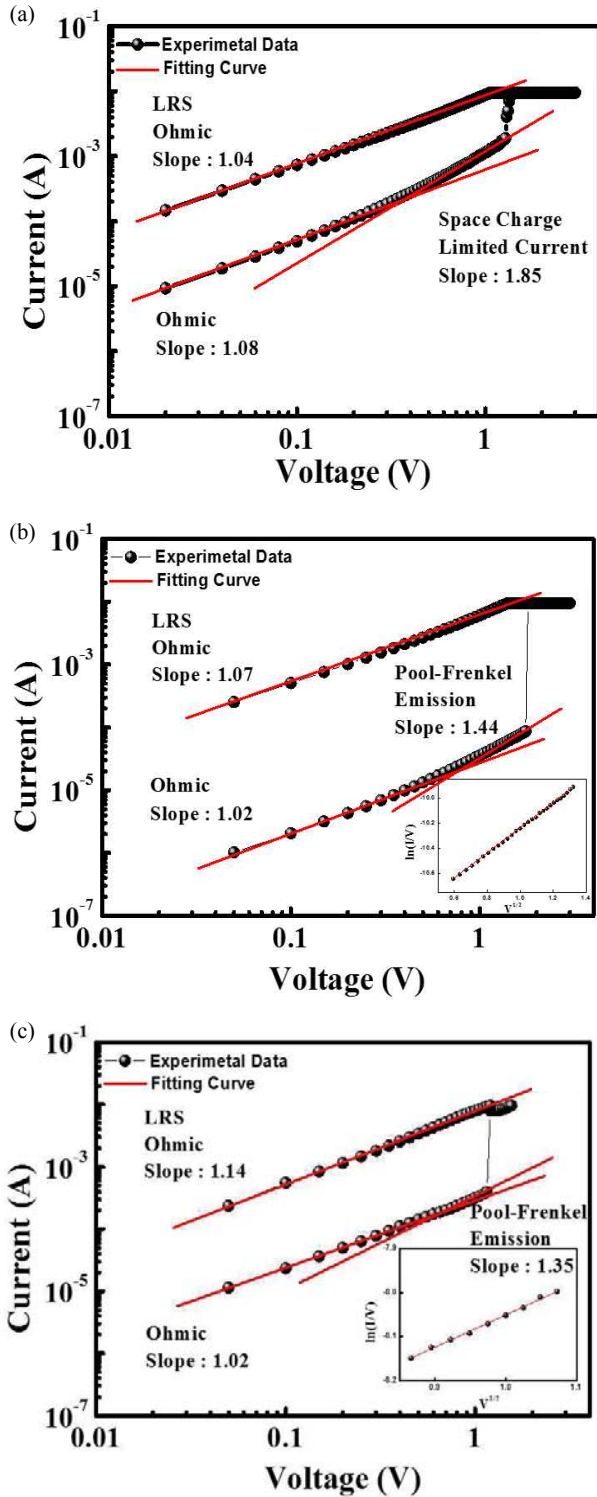


Fig. 6. I-V characteristics of (a) PMMA, (b) PMMA-HfO_x and (c) HfO_x ReRAM devices. HRS curves of (a) was fitted by SCLC model, whereas HRS curve of (b) and (c) were fitted by Poole-Frenkel emission model.

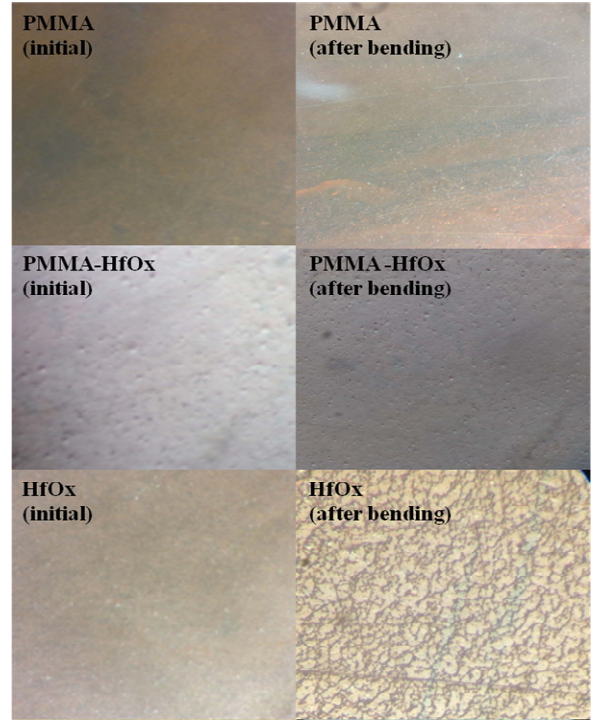


Fig. 7. Optical microscopy images of PMMA, PMMA-HfO_x and HfO_x films on deposited on the polyimide substrate.

PMMA-HfO_x 소자와 HfO_x 소자는 식 (3)의 PF 전도기구를 따른다는 것을 알 수 있다 [15].

$$J_{PF} = qn\epsilon\mu \exp\left[\frac{-q(\Phi_B - \sqrt{qE/\pi\epsilon\epsilon_0})}{k_B T}\right] \quad (3)$$

여기서 Φ_B 는 유효장벽높이, k_B 는 볼츠만상수 T 는 절대온도, ϵ_0 는 진공에서의 유전율을 나타낸다. 따라서, 유기재료인 PMMA ReRAM은 박막 내부의 트랩에 의한 저항 변화 동작을 나타내는 반면, 무기재료인 HfO_x와 이를 포함하는 하이브리드 PMMA-HfO_x ReRAM은 전도성 필라멘트의 형성과 소멸에 의한 저항 변화 동작으로 설명이 가능하다 [16,17].

본 연구에서 제안한 PMMA-HfO_x 하이브리드 ReRAM 소자를 플렉시블 전자장치에 적용하기 위해서는 충분한 유연성을 가져야 하며, 유연기판이 휘거나 구부러져도 기계적·물리적 결함이 발생하지 않아야 한다.

그림 7은 박막의 유연성을 평가하기 위하여, 각 박막을 유연한 PI (polyimide) 기판 위에 메모리소자 제작과 동일한 조건으로 증착한 다음, 각 박막의 초기 상태와

굽힘(bending)에 따른 변형상태를 관찰한 광학현미경 사진을 나타낸다. 이때, PI 기판에 가해진 굽힘 반경(bending radius)은 2.2 mm이다. HfO_x 박막은 굽힘 이후에 깨어짐(crack)과 같은 심각한 결함이 발생하는 반면, PMMA 및 PMMA- HfO_x 박막의 경우 결함이 발생하지 않았다. 즉, 유기재료인 PMMA와 무기재료인 HfO_x 를 혼합하는 방법이 유기재료가 가지는 전기적 스트레스에 신뢰성 문제 및 무기재료가 가지는 유연기판 상에서의 물리적·기계적 결함 발생을 억제하는데 효과적이고, 또한 ReRAM 소자를 플렉시블 전자장치에 구현하기에 적합한 기술이란 것을 의미한다.

4. 결론

본 논문에서는 무기재료와 유기재료가 가지는 각각의 단점을 극복하기 위하여 용액공정을 이용하여 유기재료인 PMMA와 무기재료인 HfO_x 가 혼합된 PMMA- HfO_x 하이브리드형의 ReRAM 소자를 구현하였다. 모든 소자는 양극성 저항변화 특성을 가졌다. PMMA- HfO_x 하이브리드 소자는 PMMA 또는 HfO_x 단일 소자보다 큰 동작 전압 마진과 메모리 윈도우를 가졌다. 유기재료인 PMMA는 전기적 신뢰성이 좋지 못하였지만 무기재료인 HfO_x 를 혼합함으로써 저항변화 메모리의 안정성, 신뢰성, 수명이 크게 개선되었다. LRS 상태에서는 모두 옴 전도특성을 보였다. 한편, HRS 상태에서는 PMMA와 PMMA- HfO_x ReRAM은 공간전하 제한 전류 전도를 보였지만, HfO_x ReRAM은 Poole-Frenkel 전도를 보였다. PI 기판 상에 증착된 각각의 박막에 대한 유연성 테스트 결과, HfO_x 박막은 심각한 결함이 발생하였지만 PMMA 및 PMMA- HfO_x 박막은 결함이 발생하지 않고 우수한 유연성을 보였다. 따라서, 본 연구에서 제안한 유기재료인 PMMA와 무기재료인 HfO_x 를 혼합하는 방법은 유기재료의 전기적 신뢰성 및 무기재료의 유연성을 효과적으로 개선시킬 수 있고, 향후 플렉시블 및 웨어러블 전자기기용 비휘발성메모리 제작에 유용한 기술로 기대된다.

감사의 글

이 논문은 2013년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업(No.2013R1A1A2A10011202).

REFERENCES

- [1] Q. Liu, J. Sun, H. Lv, S. Long, K. Yin, N. Wan, Y. Li, L. Sun, and M. Liu, *Adv. Mater.*, **24**, 1844 (2012). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/adma.201104104>]
- [2] S. Kim, H. Moon, D. Gupta, S. Yoo and Y. K. Choi, *IEEE Trans. Electron. Dev.*, **56**, 4 (2009). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/TIE.2008.2008757>]
- [3] C. D. Müller, A. Falcou, N. Reckefuss, M. Rojahn, V. Wiederhirn, P. Rudati, H. Frohne, O. Nuyken, H. Becker, and K. Meerholz, *Nature*, **421**, 829 (2003). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1038/nature01390>]
- [4] G. Dennler and N. S. Sariciftci, *Proceedings of the IEEE*, **93**, 1429 (2005). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/JPROC.2005.851491>]
- [5] G. Darlinski, U. Bottger, and R. Waser, *J. Appl. Phys.*, **97**, 093708 (2005). [DOI: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/97/9/10.1063/1.1888046>]
- [6] M. Mizukami, N. Hirohata, T. Iseki, K. Ohtawara, T. Tada, S. Yagyu, T. Abe, T. Suzuki, Y. Fujisaki, Y. Inoue, S. Tokito, and T. Kurita, *IEEE Electron Device Lett.*, **27**, 249 (2006). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/LED.2006.870413>]
- [7] J. Mangalam, S. Agarwal, A. N. Resmi, M. Sundararajan, and K. B. Jinesh, *Organic Electronics*, **29**, 33 (2016). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.orgel.2015.11.017>]
- [8] R. Huang, Y. Cai, Y. Liu, W. Bai, Y. Kuang, and T. Wang, *Circuits and Systems*, 838 (2014).
- [9] Z. Fan, D. Wang, J. G. Lu, X. Mo, C. Lou, Y. Yao, and G. Chen, *In Nanotechnology, IEEE-NANO*, **2**, 588 (2003). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/NANO.2003.1230979>]
- [10] H. T. Lin, Z. Pei, and Y. J. Chan, *Electron Device Letters, IEEE*, **28**, 569 (2007). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/LED.2007.899668>]
- [11] D. Basak, S. Karan, and B. Mallik, *Solid State Commun.* **141**, 483 (2007). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ssc.2006.12.014>]
- [12] P. Wong, H. Y. Lee, S. Yu, Y. S. Chen, Y. Wu, P. S. Chen, B. Lee, F. T. Chen, and M. J. Tsai, *Proceeding of the IEEE*, **100**, 1951 (2012). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/JPROC.2012.2190369>]
- [13] E. J. Yoo, M. Lyu, J. H. Yun, C. J. Kang, Y. J. Choi, and L. Wang, *Advanced Materials*, **27**, 6170 (2015) [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/adma.201502889>]
- [14] H. W. Shin, J. H. Park, H. Y. Chung, K. H. Kim, H. D. Kim, and T. G. Kim, *Applied Physics Express*, **7**, 024202 (2014). [DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/APEX.7.024202>]
- [15] I. Hwang, M. J. Lee, G. H. Buh, J. Bae, J. Choi, J. S. Kim, S. Hong, Y. S. Kim, I. S. Byun, S. W. Lee, S. E. Ahn, B. S. Kang, S. O. Kang, B. H. Park, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 052106 (2010). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.3477953>]
- [16] H. Jo, J. A. Lim, H. J. Chang and Y. S. Kim, *Macromol. Rapid Commun.*, **34**, 355 (2013). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/marc.201200614>]
- [17] A. Ramadoss, K. Krishnamoorthy and S. J. Kim, *Appl. Phy. Exp.*, **5**, 085803 (2012). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1143/APEX.5.085803>]