

전해질 절연체 기반 그래핀 트랜지스터

Polyelectrolyte Gated Graphene Transistors

이영빈¹ · 김현우¹ · 조정호^{1,2} | Youngbin Lee¹ · Hyunwoo Kim¹ · Jeong Ho Cho^{1,2}

¹SKKU Advanced Institute of Nanotechnology (SAINT),
2066, Seobu-ro, Jangan-gu, Suwon-si, Gyeonggi-do 16419, Korea

²School of Chemical Engineering, Sungkyunkwan University,
2066, Seobu-ro, Jangan-gu, Suwon-si, Gyeonggi-do 16419, Korea

E-mail: jhcho94@skku.edu

1. 서론

반도체 소자 기술은 고성능화의 트렌드를 벗어나 새롭게 도래한 웨어러블 전자기기 시대에 대응하기 위해 발전을 거듭하고 있다. 반도체 트랜지스터를 구성하는 핵심요소인 전극, 채널 및 절연층 소재는 다양한 외부의 물리적인 자극(굽힘, 늘림, 뒤틀림 등)에도 기계적, 전기적 특성이 보존되어야 하는 요구에 직면해 있다.¹ 그래핀을 비롯한 2차원 나노소재는 약 1 nm 미만의 원자층 두께를 갖는 동시에 외부의 물리적인 자극에도 기계적, 전기적 안정성을 갖는 차세대 반도체 소자로서 급부상하고 있다. 특히 높은 전하농도를 가지는 그래핀은 반도체 소자의 채널 및 전극으로 활용될 수 있기 때문에 2010년 노벨 물리학상 수상으로서 높은 응용 가치를 인정받았다. 이로 인해 그래핀을 기반으로 한 웨어러블 전자기기용 반도체 트랜지스터를 구현하기 위해 소자를 구성하는 최적의 절연체 소재를 개발하기 위한 연구의 중요성이 대두되고 있다.² 대표적으로 원자층 증착(atomic layer deposition)을 통한 높은 정전용량을 갖는 HfO₂ 혹은 Al₂O₃ 등의 산화물 절연체를 그래핀 채널 위에 직접 형성시키는 연구가 진행되었으나, 높은 표면 안정성을 갖는 그래핀 채널 위에 절연체를 화학적 결합을 통해 형성시키는 것이 어렵고 절연체의 dielectric loss가 발생하기 쉽다. 또한 산화물 절연체는 기계적 유연성이 낮기 때문에 그래핀 채널과 결합하여 웨어러블 기기에 응용되기에 한계가 있다. 기계적 유연성이 높은 고분자 절연체 소재를 그래핀 채널 위에 적용하는 연구가 보고되기도 하였으나, 신뢰성이 낮고 높은 누설전류로 인해 안정적인 정전용량을 얻는데 한계가 있었다. 한편 전해질 기반의 절연체를 사용했을 때, 이온의 움직임에 따라 분극이 일어나는 물리적 특성에 기인하여 높은 정전용량을 얻을 수 있고, 이를 통해 낮은 구동전압 하에 그래핀 트랜지스터를 동작시킬 수 있는 보고가 주목 받고 있다. 특히, 전해질 절연체의 기계적 유연성은 그래핀 트랜지스터가 다양한 유연전자소자로서 활용될 수 있는 핵심적인 장점으로 부각되고 있다.

Author



이영빈

2009 성균관대학교 신소재공학부 (학사)
2015 성균관대학교 나노과학기술학과 (박사)
2015-현재 성균관대학교 나노소재기반 휴먼인터페이스 융합연구센터 (Post-Doc.)



김현우

2014 성균관대학교 화학공학부 (학사)
2014-현재 성균관대학교 나노과학기술학과 (석사과정)



조정호

2001 서강대학교 화학공학과 (학사)
2003 포항공과대학교 화학공학과 (석사)
2006 포항공과대학교 화학공학과 (박사)
2008 University of Minnesota 화공재료공학과 (Post-Doc.)
2008-2012 숭실대학교 유기신소재·파이버공학과 조교수
2012-현재 성균관대학교 SAINT/화학공학부 부교수

본 논문에서는 고분자 전해질을 절연체로 활용한 유연 그래핀 트랜지스터의 제작 공정 및 특성에 대해 다양한 구조적 관점에서 소개하고자 한다. 구체적인 소자에 대한 소개에 앞서 고분자 전해질을 절연층으로 활용하여 높은 정전용량이 얻어지는 물리적인 원리와 소자로 활용하기 위한 용액 공정법을 고찰하였다. 고분자 전해질의 물리적인 구동 원리에 기인하여 구현할 수 있는 수직/수평 구조의 그래핀 트랜지스터를 다양한 유연성 기판에 구현한 예를 소개하였다. 나아가, 고분자 전해질의 물성을 변화시킴에 따른 그래핀 트랜지스터 및 RF 소자의 구동 특성을 비교하였다. 이와 같은 연구는 눈앞에 도래한 웨어러블 소자 시대에 적용될 수 있는 유연 그래핀 소자의 응용을 위한 기반으로서 활발히 활용될 수 있을 것으로 기대한다.

2. 본론

2.1 고분자 전해질 절연체

전해질 절연체는 전기장이 가해졌을 때, 소재 내 불규칙적으로 존재하는 양/음이온의 전기장의 방향에 따른 상대적 움직임으로 인해 주어진 표면에 전기적 이중층을 생성하여 강한 분극을 유도한다(그림 1). 특히, 전해질 절연체에 의해 형성되는 정전용량은 일반적인 절연체가 두께에 의존하는 것과 달리 전기적 이중층의 형성에만 의존한다. 이러한 특성으로 인해 전해질/반도체 채널 계면에 HfO_2 혹은 Al_2O_3 등의 산화물 절연체로 구현할 수 없는 약 10^{14} cm^{-2} 이상의 높은 전하밀도 유도가 가능하며 낮은 구동전압을 갖는 소자에 응용할 수 있다는 장점이 있다.³⁻⁶ 그러나, 전해질 절연체의 용액 특성으로 인해 표면에 일정한 물리적인 형상을 유지하지 못하기 때문에 고형화를 통한 형상학적 안정성을 부여하여야 한다. 많은 연구자들이 전해질의 높은 분극 특성을 유지하는 동시에 고분자를 활용하여 고형화시킬 수 있는 공정을 제시하였다. 대표적으로 2008년 미네소타 대학의 C. Daniel Frisbie 그룹에 의해 전해질 물질과 삼중 블록 공중합체를 이용하여 액체 전해질을 젤 형태

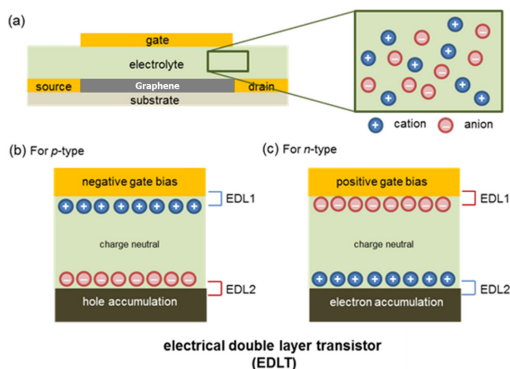


그림 1. 전해질 절연체의 분극 현상.

로 고형화하는데 성공하였으며, 잉크젯 프린팅 기술을 도입해 유기물 반도체 소재를 채널로 하는 유기박막트랜지스터의 게이트 절연체로서 활용하는 연구 결과를 보고한바 있다.⁷⁻⁹ 고형화 공정 시 전해질 절연체의 가교 정도에 따라 소재 내에서 일어나는 양/음이온의 이동도가 영향을 받기 때문에 분극 강도 및 응답속도가 감소하지 않는 범위 내에서 공정조건을 안정화 하는 것이 매우 중요하다. 이를 활용하면 전해질 절연체의 높은 정전용량을 잃지 않고($\sim 5 \mu\text{F}/\text{cm}^2$), 3 V 미만의 낮은 구동전압을 가지는 고성능 트랜지스터의 구현이 가능할 뿐 아니라, 다양한 외부의 물리적 자극에 안정적으로 전기적 특성을 유지하는 게이트 절연체로서 많은 각광을 받고 있다.¹⁰ 일반적으로 널리 사용되는 고분자 절연소재는 1-ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide([EMIM][TFSI]) 전해질과 poly(styrene-*b*-methyl methacrylate-*b*-styrene)(PS-PMMA-PS) 삼중 블록 공중합체를 이용한 이온젤(ion gel)로서 현재까지 다양한 유기박막트랜지스터의 유연 게이트 절연체로 사용되고 있다.¹¹

2.2 이온젤 기반의 그래핀 트랜지스터

이차원 나노소재인 그래핀은 반도체 특성을 갖는 동시에 높은 전하농도에 의한 금속성을 보이기 때문에, 트랜지스터 소자의 채널 및 전극으로서 동시에 활용하여 단일 물질 기반 소자를 구현할 수 있는 장점이 있다. CVD를 통해 합성된 그래핀을 고분자 지지층을 이용한 전사법을 사용해 플라스틱 또는 고무와 같은 유연기판에 전사하고 포토리소 그래피와 플라즈마 식각 공정을 통해 채널 및 전극 영역의 패턴을 제작할 수 있다.¹²⁻¹⁴ 전사된 그래핀은 전사 횟수에 따라 두께가 원자층 단위로 조절되며, 이에 의존하는 전하밀도 제어가 가능하다. [EMIM][TFSI] 전해질 기반 이온젤을 잉크젯 또는 에어로졸 젯 프린팅 기법을 통해 원하는 채널 영역 위에 게이트 절연체 패턴을 형성할 수 있다.¹⁵ 전도

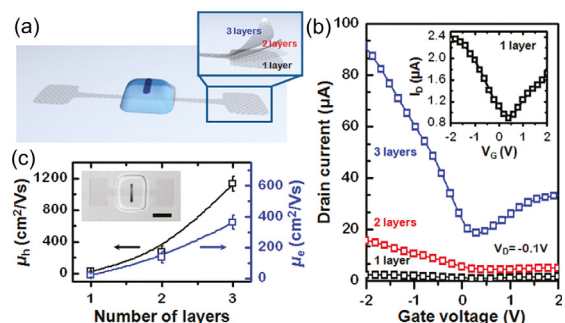


그림 2. (a) 고무 기판 위 제작된 이온젤 절연체 기반 그래핀 트랜지스터, (b) 제작된 유연 그래핀 트랜지스터의 채널 두께에 따른 전하전달 특성, (c) 그래핀 채널의 두께에 따른 전자 및 정공 이동도. Reproduced with permission of *Nano Lett.* Copyright (2011) American Chemical Society.

성 PEDOT:PSS 투명 전극을 이온젤과 마찬가지로 프린팅 공정을 이용하여 게이트 전극으로 패턴 하면 수직 방향으로 게이트 전압이 인가되는 일반적인 MOSFET 구조의 소자를 제작할 수 있다(그림 2a).¹⁶ 이렇게 제작된 소자는 그래핀 채널의 특성상 전자와 정공이 모두 캐리어로 전달되는 ambipolar 특성을 보이며, 점멸비(on/off current ratio) 및 전하밀도는 그래핀 채널의 두께가 증가함에 따라 비례하는 경향을 보인다(그림 2b). 이는 다공성 유연기판에 존재하는 불순물이 그래핀 채널의 캐리어 전달에 트랩(trap)으로 작용함으로 인해, 그래핀의 두께가 증가함에 따라 기판으로부터 기인한 부정적 요인으로부터 영향이 감소하기 때문이다. 이에 따라 그래핀 채널의 층수가 3층일 때, 전자 및 정공 이동도를 각각 $362 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 그리고 $1,131 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 까지 증가시킬 수 있었으며 이는 단층 그래핀 채널보다 확연히 증가한 수치로 판단할 수 있다(그림 2c).

수직 구조의 전해질 절연체 기반 유연 그래핀 트랜지스터 소자는 전자 소자용 유연 기판 뿐만 아니라 일상생활에서 흔히 접할 수 있는 풍선과 같은 소재를 기판으로 하여 제작될 수 있다. 그림 3은 실제 풍선 위에 제작된 소자의 전하 전달 특성으로서 전자 및 정공 이동도의 큰 손실 없이 소자가 구현될 수 있음을 확인할 수 있다. 특히 풍선 기판의 부피가 커짐에 따라 약 5%의 표면 스트레인 범위 내에서 안정적인 전하 전달특성을 보였으며 실제 약 3%의 표면 스트레인을 1,000회 이상 인가하였을 때 전자 및 정공 이동도가 안정적으로 유지되었다. 이처럼 다양한 유연 기판 위에 제작이 가능한 그래핀 트랜지스터 소자를 이온젤 게이트 절연체를 사용해 구동할 때, 간단한 프린팅 공정을 적용할 수 있을 뿐 아니라 그래핀이 가진 기계적 유연성을 온전히 활용할 수 있다.

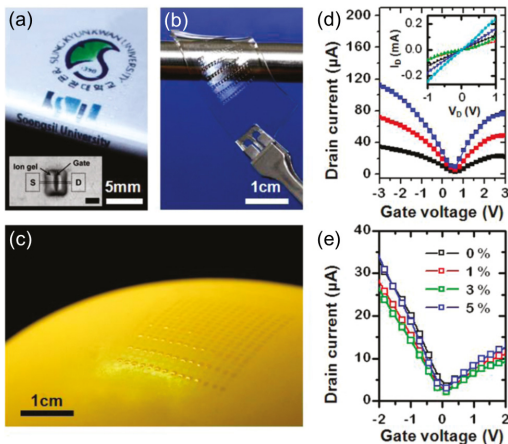


그림 3. (a-c) 다양한 유연기판(PET, PDMS, 풍선)에 구현한 이온젤 절연체 기반 그래핀 트랜지스터, (d) 드레인 바이어스의 변화에 따른 그래핀 트랜지스터의 전달 특성, (e) 물리적으로 인가한 표면 스트레인에 따른 소자의 전달특성. Reproduced with permission of *Nano Lett.*, Copyright (2011) American Chemical Society.

2.3 Coplanar 구조의 이온젤 기반 그래핀 트랜지스터

전해질 절연체가 주어진 전기장에 의해 이온의 이동을 통한 전기적 이중층을 형성하기 때문에, 일반적인 산화물 혹은 고분자 절연체로 구현하는 수직구조의 MOSFET뿐 아니라, 동일 평면상에서 게이트 전압을 인가할 수 있는 소자 구조의 구현이 가능하다.^{17,18} 그림 4a에서 보는 바와 같이 동일 평면상에 위치한 그래핀 패턴을 게이트 전극으로 활용하여 안쪽에 위치한 그래핀 채널에 이온젤 절연체를 통해 스위칭을 유도한다. 비록 게이트 전극과 채널간의 간격이 약 $300 \mu\text{m}$ 임에도 불구하고 이온의 이동으로 인해 효과적인 분극 현상을 유도할 수 있다. 실제로 유도되는 분극 효과는 게이트와 채널의 면적에 직접적으로 비례하고 게이트와 채널간의 간격에는 큰 영향을 받지 않았다. 또한 유연 전자소자 구현 시 수직구조의 트랜지스터와는 달리 동일 평면에서 일어나는 물리적인 변형 만이 소자의 특성에 영향을 미치지 때문에, 웨어러블 전자소자 구조에 더욱 적합한 소자구조로서 활용될 수 있을 것으로 기대할 수 있다.¹⁹

게이트 전극을 마지막에 프린팅 공정을 통해 구현한 수직구조의 트랜지스터와는 달리 그래핀 채널을 비롯한 소스, 드레인 및 게이트 전극 패턴을 동시에 형성시키는 공정상의 장점이 부각될 수 있다(그림 5a). 패턴된 그래핀은 다양한 유연성 기판에 전사될 수 있으며 잉크젯 및 에어로졸 프린팅 기법을 활용하여 게이트 전극으로부터 채널에 걸친 영역에 이온젤 절연체 패턴을 형성할 수 있다. 결과적으로

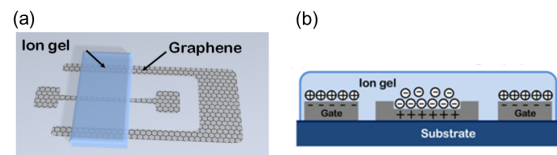


그림 4. (a) Coplanar 구조의 전해질 절연체 기반 그래핀 트랜지스터 소자 구조, (b) 전해질 절연막을 통한 동일 평면상에서의 분극 현상.

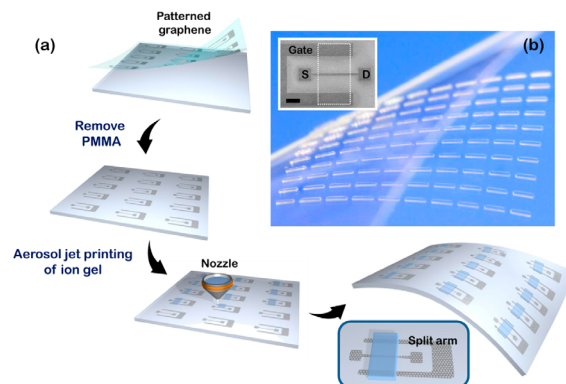


그림 5. (a) Coplanar 구조의 전해질 절연체 기반 유연 그래핀 트랜지스터 소자 제작 공정, (b) 제작된 광학적으로 투명한 평면구조의 전해질 절연체 기반 유연 그래핀 트랜지스터 소자. Reproduced with permission of *ACS Nano*. Copyright (2012) American Chemical Society.

제작된 유연 트랜지스터 소자는 광학적으로 투명도가 높기 때문에 다양한 투명 웨어러블 디스플레이에 활용가치가 높다(그림 5b).

Coplanar 구조의 전해질 절연체 기반 유연 그래핀 트랜지스터 소자는 일반적인 수직 구조 소자와 마찬가지로 2 V 미만의 낮은 전압에서 구동이 가능하였으며, 이는 전해질 절연체 특유의 물리적 분극 원리로부터 기인한다. 그러나 이온젤의 주파수에 따른 절연체 특성을 관찰한 결과 약 1 kHz 이상의 주파수영역에서 정전용량이 감소하는 현상이 관찰되는데, 이는 평면상에 분극 되는 이온젤 내부의 양/음이온의 이동속도가 수직구조에 비해 상대적으로 느리기 때문이다. 제작된 트랜지스터는 플라스틱 기판 위에서 약 628 cm²/Vs 그리고 900 cm²/Vs의 전자 및 정공 이동도를 보였으며, 이는 수직구조의 소자와 거의 동등한 값이다. 또한, 약 2% 범위의 외부 물리적 굽힘 스트레인을 약 5,000회 인가하였을 때, 안정적인 전하 이동 특성을 유지 하였다. 이와 같은 coplanar 구조의 그래핀 트랜지스터는 이온젤과 그래핀이 가지는 물리적인 특성에서 기인한 장점을 극대화한 구조로서 높은 응용가치가 있다고 판단된다.

2.4 프로톤 컨덕터(Proton Conductor) 기반의 그래핀 트랜지스터

앞서 소개한 이온젤은 유연소자와 스트레처블 소자의 게이트 절연체로 많이 연구 되어왔다. 그러나 이온젤을 기

반으로 한 소자의 경우 이온의 이동에 의해 소자의 응답속도가 영향을 받기 때문에, 이온의 종류나 크기에 민감하다는 것을 쉽게 예상할 수 있다. 그리고 가장 큰 구조적 문제는 수 마이크로 미터 두께를 갖는 이온젤은 소자의 크기를 줄이는데 단점으로 작용한다. 이러한 이온젤의 한계점을 보완하기 위해 이온젤의 장점을 가지면서 단점을 보완할 수 있는 게이트 절연체의 필요성이 대두되었다. 2006년 Berggren 그룹에서 프로톤 컨덕터(proton conductor)를 이용한 고분자 트랜지스터를 보고한 바 있다.²⁰ 프로톤 컨덕터에 게이트 전압을 인가하면, 일반적인 고분자전해질 게이트 절연체와 마찬가지로 게이트 전극-전해질 및 전해질-채널 사이에 전기적 이중층이 생기는데, 이로 인해 높은 전기용량을 가져 트랜지스터의 저전압 구동을 가능하게 하고, 높은 전류를 형성한다. 또한 프로톤 컨덕터의 전기적 이중층 형성은 작은 크기의 수소이온을 통하여 이루어지므로 소자의 응답속도의 향상을 기대할 수 있다. 당시 Berggren 그룹에서 보고한 연구에 따르면 트랜지스터가 온 상태가 되는데 약 0.5 ms가 소요되었다(그림 7).

2009년 Berggren 그룹에서는 poly(styrene sulfonic acid)(PSSH)를 이용하여 poly(3-hexylthiophene)(P3HT) 채널의 유기박막트랜지스터를 보고하였다.²¹ 저주파에서 10 μF/cm² 정도의 전기용량 값으로 인해, 1 V 이내에서 낮은 전압 구동이 가능하며, 습도가 있는 상태에서 전기적 이중층을 1 μs 미만에서 형성할 수 있다. 최근 본 연구 그룹에서는 대표적인 프로톤 컨덕터 PSSH를 이용한 그래핀 트랜지스터를 개발하였다. PSSH 게이트 절연체는 10 Hz에서 약 0.5 μF/cm²의 전기 용량을 가지며, 이를 이용해 2 V 내에서 구동이 가능한 그래핀 트랜지스터를 구현하였고, 1 kHz의 응답속도를 보였다. 프로톤 컨덕터 기반의 소자 성능 향상을 위해, 다양한 종류의 sodium halide 이온 (NaF, NaCl, NaBr, NaI)을 첨가하였으며 이를 통해 그래핀 소자의 전하 이동도, 전류밀도 및 응답속도를 향상하는데 성공

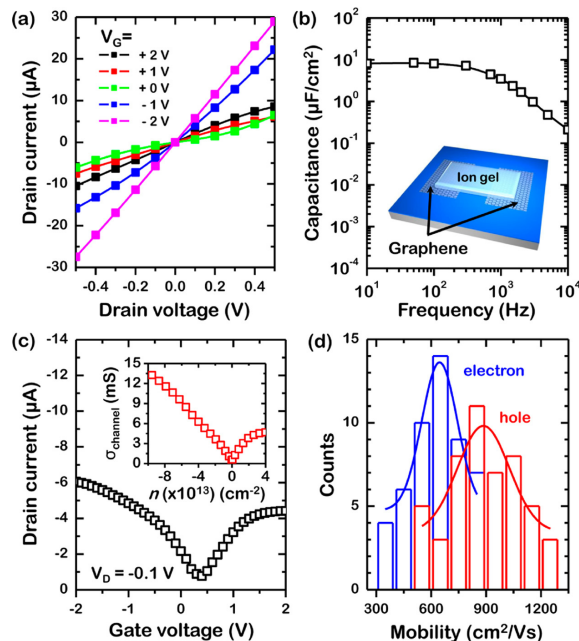


그림 6. (a) 평면구조의 전해질 절연체 기반 그래핀 트랜지스터의 output 특성, (b) 동일평면상에서 일어나는 이온젤 절연체의 주파수에 따른 정전용량, (c) 평면구조의 전해질 절연체 기반 그래핀 트랜지스터의 전달 특성, (d) 전자 및 정공 이동도 분포도. Reproduced with permission of ACS Nano, Copyright (2012) American Chemical Society.

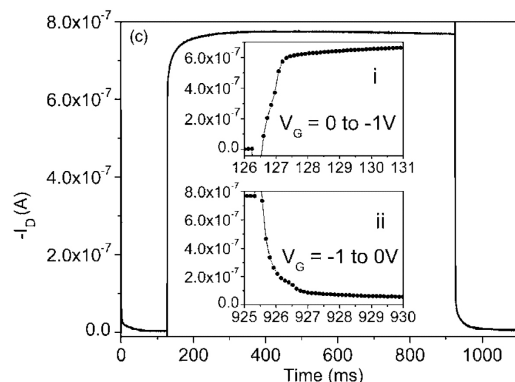


그림 7. 프로톤 컨덕터 기반의 유기박막트랜지스터 동작속도. Reproduced with permission of Appl. Phys. Lett, Copyright (2006) AIP Publishing LLC.

하였다. PSSH의 농도를 증가시키게 되면 전자 이중층의 이온 밀도가 높아져 전기 용량이 증가한다.²² 이는 그래핀 채널에 높은 전하밀도를 유도해 전류 양을 증가시키고 전하 이동도를 증가시킨다. 또한, halide 이온의 원자 번호가 증가함에 따라 halide 이온이 sodium 양이온과 분리되려는 힘이 강해 전자 이중층 형성을 돕게 된다.²³ 이는 역시 그래핀 채널의 높은 전하 밀도를 유도하고, 전하 이동도를 증가시킨다. 특히, NaI의 경우 전자 및 정공 이동도가 1,000 cm²/(V·s) 까지 증가하였으며, 이온전도도의 증가로 인해 10 kHz까지 응답속도를 향상시킬 수 있었다(그림 8).

또 다른 주목할 점은 PSSH 프로톤 컨덕터에 sodium halide를 첨가하였을 때, 그래핀의 Dirac 전압이 0 V 근처로 이동한다는 점이다. Sodium halide의 농도를 증가시킬수록 0 V로 이동하였는데, 이는 sodium halide가 그래핀의 불순물 효과를 screening 하기 때문이다. 또한 halide의 원자번호가 증가함에 따라서도 같은 현상이 나타난다.

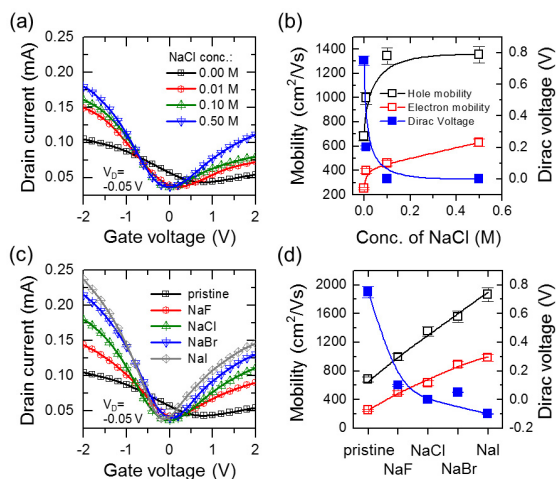


그림 8. 프로톤 컨덕터를 이용한 그래핀 트랜지스터, (a) 프로톤 컨덕터에 첨가된 sodium halide 농도 별 전류-게이트 전압 특성과 (b) 정공 이동도, 전자 이동도, Dirac 전압 특성, (c) sodium halide 종류 별 전류-게이트 전압 특성과 (d) 정공 이동도, 전자 이동도, Dirac 전압 특성.

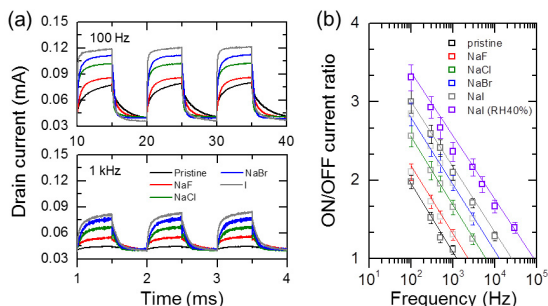


그림 9. 대기 중에서의 고분자 전해질을 이용한 그래핀 트랜지스터 동작 속도 성능, (a) 100, 1 kHz에서의 sodium halide 종류 별 그래핀 트랜지스터 소자의 응답속도 특성, (b) Sodium halide 종류 별 그래핀 트랜지스터 소자의 응답속도 특성.

PSSH의 또 다른 특징은 대기 중에 노출된 상태에서 H₃O⁺의 영향으로 인해 전하 이동도와 동작 속도 등의 성능이 향상된다는 것이다. H₃O⁺ 이온은 전기적 이중층 내에서 수소 이온과 술폰산염(PSS) 사이의 정전기적 상호작용을 방해하여 전기적 이중층이 강하게 형성될 수 있도록 하여 전기 용량과 전하의 이동도를 증가시키고, 트랜지스터 소자의 동작속도가 증가한다. 실제로 NaI를 이용한 소자를 습도 40%의 대기 중에 노출시켰을 때, 50 kHz까지 응답속도가 증가하게 되었으며, 차단 주파수가 약 100 kHz인 것으로 나타났다(그림 9).

2.5 전해질 절연체 기반 그래핀 쇼트키 장벽(Schottky Barrier) 트랜지스터

그래핀은 Dirac cone 형태의 에너지 밴드구조로 인해 반도체 및 금속성을 동시에 가질 수 있지만, 에너지 밴드갭의 부재로 인한 트랜지스터의 채널 소재로 필요 조건인 높은 on/off current ratio를 구현하는데 한계가 있다. 한편, 그래핀의 에너지 밴드구조 특성상 일함수가 조절 가능한 전극으로서 응용 가치가 있기 때문에 실리콘 및 산화물 반도체 등 기존 반도체 채널 소재와의 접합을 통해 형성된 쇼트키 장벽(Schottky barrier)을 게이트 전압에 따라 조절하는 새로운 개념의 트랜지스터 구현이 가능하다.^{24,25} 쇼트키 장벽의 조절을 통해 주입되는 캐리어 농도를 급격히 변화시켜 반도체 채널의 스위칭을 조절하기 때문에 게이트 전압이 그래핀 전극에 효과적으로 전달되어 일함수를 저전압 범위에서 조절하도록 하는 것이 중요하다. 쇼트키 장벽을 극복하여 그래핀으로부터 주입된 캐리어는 확산되는 채널 길이가 매우 짧을수록 높은 구동 전류를 얻어내는데 효과적이다. 따라서, 소스/드레인 및 채널의 기하학적 구조를 수직 방향으로 위치한 그래핀과 금속전극 사이에 형성된

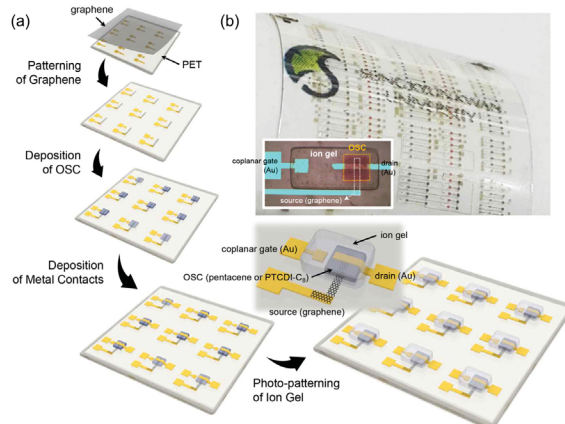


그림 10. (a) 전해질 절연체 기반 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터의 제작 공정 및 구조의 모식도, (b) 플라스틱 기판 위에 제작된 반투명 유연 소자. Reproduced with permission of *Adv. Mater.* Copyright (2015) WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim.

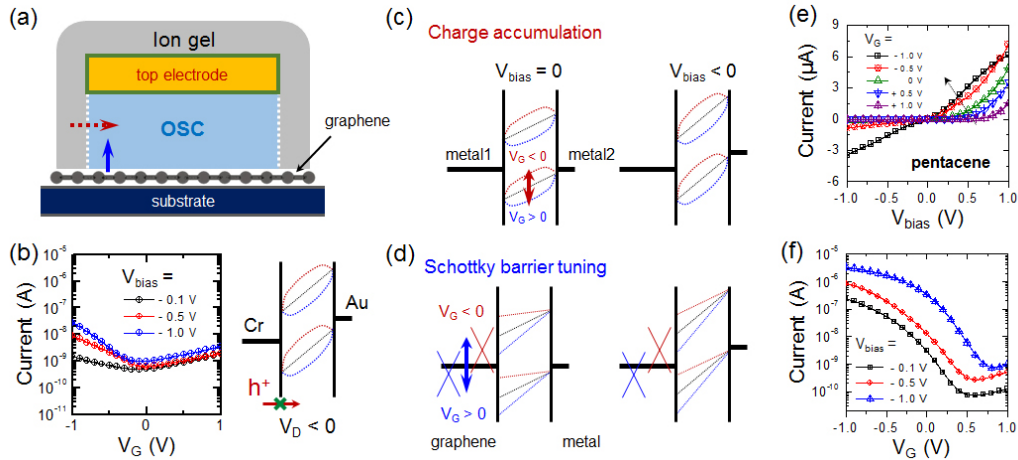


그림 11. (a) 수직 구조의 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터의 전류 제어 메커니즘, (b) 금속전극만을 이용한 쇼트키 장벽 트랜지스터의 전달특성 및 에너지 밴드 구조, (c) 금속전극을 기반으로 한 쇼트키 장벽 트랜지스터의 전하축적 메커니즘, (d) 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터의 전하 주입 메커니즘, (e, f) 전해질 절연체 기반 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터의 드레인 전류-전압특성 및 전달 특성. Reproduced with permission of *Adv. Mater.* Copyright (2015) WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim.

유기반도체 채널의 두께가 온전히 채널이 되도록 설계하였다. 또한 게이트 전극으로부터 인가되는 전압이 전해질 절연체를 통해 수직 방향의 기하학적 구조를 갖는 소스/드레인 및 채널에 효과적으로 분극을 유도할 수 있는 형태로, 앞서 언급한 동일 평면상에 게이트 전극 및 전해질 절연체 패턴을 형성하였다. 그림 10a는 기존의 포토리소그래피를 이용한 패턴 및 증착 공정으로 구성된 전해질 절연체 기반의 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터의 제작 공정 및 소자 구조의 모식도이다. 그래핀 소스 전극과 골드 드레인 전극 사이에 유기반도체 소재인 p형 pentacene 혹은 n형 dioctyl perylene tetracarboxylic diimide(PTCDI-C₈)가 증착되어 있고 동일 평면상의 골드 게이트 전극으로부터 전기장을 소스/드레인 전극 및 채널에 분극을 유도할 수 있도록 이온젤 절연층이 패턴 되어 있다. 완성된 소자는 박막 형태의 골드패턴, 그래핀, 이온젤 및 유기반도체 소재로 구성되어 있기 때문에 플라스틱 기판 위에서 높은 유연성을 가진다(그림 10b).

게이트 전압이 이온젤 절연체를 통해 소스/드레인 및 채널에 전달될 때, 그래핀 전극은 Dirac cone 내에 존재하는 전자의 농도가 이온젤을 통한 게이트 전압의 영향으로 인해 조절되어 일함수가 변화되는 효과로 인해 유기반도체 소자와의 쇼트키 장벽이 조절되어, 반도체 내로 주입되는 전하의 농도가 변화된다(그림 11a의 실선 화살표). 일반적인 이온젤 기반의 유기박막트랜지스터의 경우, 유기 반도체 채널 내부로의 이온 침투로 인해 분극이 유도되는 효과를 무시하기 어렵다(그림 11a의 점선 화살표). 이를 확인하기 위해 그래핀과 일함수가 비슷한 Cr 전극을 그래핀 대신 사용하는 소자를 제작해 비교한 결과, 그 효과에 의한 소자

의 스위칭은 약 10¹에 해당한다는 것을 확인하였다(그림 11b, c). 하지만 실제 그래핀 소스 전극을 사용하는 경우, 인가되는 게이트 전압에 따른 쇼트키 장벽의 조절로 인해 채널 내에 주입되는 전하량을 급격히 증가시킬 수 있기 때문에 10³ 이상의 on/off 전류 비율을 얻을 수 있다(그림 11d, e, f). 이온젤 절연체가 갖는 높은 정전 용량으로 인해 그래핀 일함수의 효과적인 제어가 가능하기 때문에, 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터는 1 V 내의 저전압 구동이 가능하다. 결론적으로 전해질 절연체 기반 그래핀 쇼트키 장벽 트랜지스터는 그래핀의 일함수 조절 특성과 전해질 절연막의 높은 정전 용량을 활용한 연구 결과로, 높은 발진 가능성을 가진다.

3. 결론

현실로 도래한 웨어러블 전자 소자의 개발수요를 충족시키기 위한 물리적인 필요 조건을 만족하는 반도체 소자에 관한 연구가 활발히 이루어지고 있다. 이러한 맥락에서 수 많은 연구자들이 2차원 나노 소재인 그래핀을 활용한 다양한 차세대 반도체 소자를 구현하기 위해 소재 및 소자의 구조적 측면에서 다양한 접근 방법을 통해 연구를 시도하였다. 본 기고에서는 그래핀의 이차원 구조 및 물리적 특성에서 기인한 반도체 채널 및 전극으로서 높은 응용 가치를 효과적으로 활용하기 위해 높은 정전 용량을 갖는 고분자 전해질을 절연체로 활용한 다양한 유연 트랜지스터 소자를 소개 하였다. 고분자 전해질 절연체는 1 μF/cm² 이상의 높은 정전용량을 유도할 수 있기 때문에 원자층 두께의 그래핀 채널은 2 V 미만의 낮은 전압 하에 구동이 가능하

다. 또한 전해질 절연체를 통해 그래핀이 가지는 높은 물리적 성능을 최대한으로 활용해, 유기기판에 프린팅 공정을 통해 소자 구현이 가능하다. 전해질 절연막의 물리적인 분극 원리가 양/음이온의 움직임에 의한 전기적 이중층 형성에 의존하기 때문에 동일 수평면 상의 게이트 전극으로부터 채널간의 거리에 큰 손실 없이 효과적인 분극이 가능한 coplanar 구조의 유연 그래핀 트랜지스터 개발이 가능하다. Dirac cone 구조의 에너지 밴드로 인해 일함수 조절이 용이한 그래핀을 전극으로 사용하여 그래핀/유기반도체 사이에 형성된 쇼트키 장벽의 크기를 고분자 전해질을 통해 전달되는 게이트 전압으로 제어하는 유연 트랜지스터가 보도되었으며, 이는 그래핀 트랜지스터가 가진 낮은 스위칭 특성을 개선할 수 있는 소자 구조로 각광을 받고 있고 그래핀-전해질 절연체 기반의 트랜지스터의 새로운 발전 방향을 제시하였다. 이와 같은 전해질 절연체 기반 그래핀 트랜지스터는 지속적인 연구를 통해 웨어러블 기기 시대에 대응할 수 있는 발전 가능성이 무한한 분야임에 틀림없다.

참고문헌

1. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. a. Dubonos, I. Grigorieva, and A. Firsov, *Science*, **306**, 666 (2004).
2. C. Yan, J. H. Cho, J.-H. Ahn, *Nanoscale*, **4**, 4870 (2012).
3. F. Xia, D. B. Farmer, Y.-m. Lin, and P. Avouris, *Nano Lett.*, **10**, 715 (2010).
4. R. Cheng, J. Bai, L. Liao, H. Zhou, Y. Chen, L. Liu, Y.-C. Lin, S. Jiang, Y. Huang, and X. Duan, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **109**, 11588 (2012).
5. Y.-M. Lin, K. A. Jenkins, A. Valdes-Garcia, J. P. Small, D. B. Farmer, and P. Avouris, *Nano Lett.*, **9**, 422 (2008).
6. J. Bai, L. Liao, H. Zhou, R. Cheng, L. Liu, Y. Huang, and X. Duan, *Nano Lett.*, **11**, 2555 (2011).
7. J. H. Cho, J. Lee, Y. Xia, B. Kim, Y. He, M. J. Renn, T. P. Lodge, and C. D. Frisbie, *Nat. Mater.*, **7**, 900 (2008).
8. J. Lee, M. J. Panzer, Y. He, T. P. Lodge, and C. D. Frisbie, *J. Am. Chem. Soc.*, **129**, 4532 (2007).
9. J. H. Cho, J. Lee, Y. He, B. Kim, T. P. Lodge, and C. D. Frisbie, *Adv. Mater.*, **20**, 686 (2008).
10. T. Fujimoto, and K. Awaga, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 8983 (2013).
11. J. Lee, L. G. Kaake, J. H. Cho, X.-Y. Zhu, T. P. Lodge, and C. D. Frisbie, *J. Phys. Chem. C*, **113**, 8972 (2009).
12. S.-K. Lee, H. Y. Jang, S. Jang, E. Choi, B. H. Hong, J. Lee, S. Park, and J.-H. Ahn, *Nano Lett.*, **12**, 3472 (2012).
13. S.-K. Lee, S. H. Kabir, B. K. Sharma, B. J. Kim, J. H. Cho, and J.-H. Ahn, *Nanotechnology*, **25**, 014002 (2014).
14. Y. Lee, S. Bae, H. Jang, S. Jang, S.-E. Zhu, S. H. Sim, Y. I. Song, B. H. Hong, and J.-H. Ahn, *Nano Lett.*, **10**, 490 (2010).
15. B. J. Kim, H. Jang, S.-K. Lee, B. H. Hong, J.-H. Ahn, and J. H. Cho, *Nano Lett.*, **10**, 3464 (2010).
16. S.-K. Lee, B. J. Kim, H. Jang, S. C. Yoon, C. Lee, B. H. Hong, J. A. Rogers, J. H. Cho, and J.-H. Ahn, *Nano Lett.*, **11**, 4642 (2011).
17. B. J. Kim, S.-K. Lee, M. S. Kang, J.-H. Ahn, and J. H. Cho, *ACS Nano*, **6**, 8646 (2012).
18. Q. Sun, D. H. Kim, S. S. Park, N. Y. Lee, Y. Zhang, J. H. Lee, K. Cho, and J. H. Cho, *Adv. Mater.*, **26**, 4735 (2014).
19. Q. Sun, W. Seung, B. J. Kim, S. Seo, S. W. Kim, and J. H. Cho, *Adv. Mater.*, (2015).
20. E. Said, X. Crispin, L. Herlogsson, S. Elhag, N. D. Robinson, and M. Berggren, *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 143507 (2006).
21. O. Larsson, E. Said, M. Berggren, and X. Crispin, *Adv. Funct. Mater.*, **19**, 3334 (2009).
22. Y. Hou, K. J. Aoki, J. Chen, and T. Nishiumi, *Univ. J. Chem.*, **1**, 162 (2013).
23. H. Lim, W. Lu, X. Chen, and Y. Qiao, *Int. J. Electrochem. Sci.*, **7**, 2577 (2012).
24. B. J. Kim, E. Hwang, M. S. Kang, and J. H. Cho, *Adv. Mater.*, **27**, 5875 (2015).
25. H. Yang, J. Heo, S. Park, H. J. Song, D. H. Seo, K.-E. Byun, P. Kim, I. Yoo, H.-J. Chung, and K. Kim, *Science*, **336**, 1140 (2012).