

산학연 연구실 소개(2)

서울대학교 유연 나노, 신경모사, 에너지 전자소자 연구실

(Printed, Flexible Nano, Neuromorphic and Energy Electronics Laboratory (PNEL), Seoul National University)

주소: 서울 관악구 관악로 1, 서울대학교 33동 316호 (우: 08826)

전화: 02-880-2542, E-mail: twlees@snu.ac.kr, 홈페이지: <https://pnel.snu.ac.kr>

연구책임자 | 이태우 교수
서울대학교 재료공학부

1. 연구실 소개

“유연 나노, 신경모사, 에너지 전자소자 연구실”은 유기/고분자/하이브리드 반도체 및 나노 소재 (그래핀, 맥신, 나노와이어 등)를 이용한 디스플레이용 발광 소자, 에너지 발전용 태양 전지, 뉴로모픽 반도체 소자 및 바이오 전자소자를 개발하며, 유연 및 신축성 전자 소자의 구현을 목표로 한다. 특히, 이러한 여러 광전 소자에서 적용할 수 있도록 자가조립에 의하여 높은 일함수를 가짐과 동시에 엑시톤 퀸칭(exciton quenching)을 막아줄 수 있는 정공주입층용 전도성 고분자인 GraHIL (gradient hole injection layer), 투명 전극으로 사용되는 ITO(indium tin oxide)를 대체할 수 있는 AnoHIL(anode hole injection layer)과 같은 전도성 고분자를 개발하여 고효율의 유연 발광소자 및 태양전지를 보고하였으며, 기체상에서 합성된 그래핀 소재와 EHD(electrohydrodynamic) 나노선 프린팅 기술을 사용하여 형성된 나노선을 이용한 트랜지스터 등의 전자 소자 및 발광소자 기술을 개발해왔다. 최근에는 유무기 페로브스카이트 소재를 이용한 발광 소자 및 태양전지의 연구를 진행하고 있으며, 2022년에 세계 최고 수준의 효율과 수명의 페로브스카이트 발광소자를 보고하였다. 더불어, 그래핀-은 나노와이어 (AgNW) 복합전극이나 2차원 맥신(MXene) 소재를 전극을 이용한 고신축성 발광소자를 개발에 성공하였으며, 저전력 인공 시냅스 및 인공 신경 소자 개발을 통한 생체 모사 전자소자를 통해 바퀴벌레나 쥐 등의 운동능력을 회복시키는 결과를 얻었다.

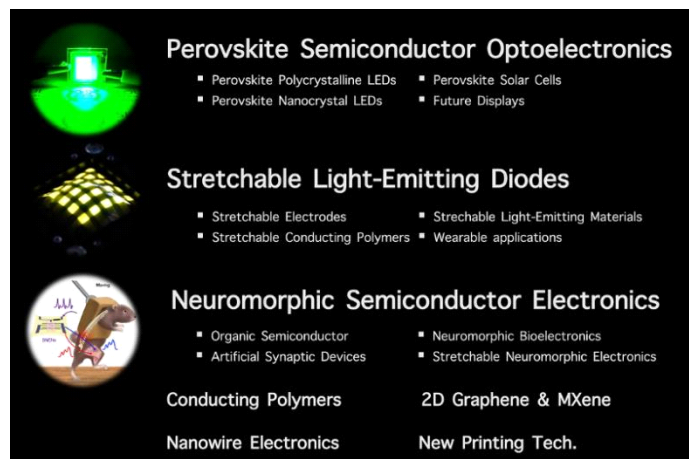


그림 1. 유연 나노, 신경모사, 에너지 전자소자 연구실의 주요 연구분야.

상기 뛰어난 연구 성과는 본 연구실의 미래지향적 교육 철학에 따라 학생들이 우수한 연구자로 성장할 수 있도록 체계화된 방식에 따라 연구와 소통을 교육시킨 결과이며, 그 밖에 미국재료학회(MRS), 국제광공학회(SPIE) 등의 유수 국제학회에서 많은 활동과 수상 경력 또한 가지고 있다. 또한 학생들의 국제 교류를 장려하여 스탠포드 대학(미국), 케임브리지 대학(영국), 프린스턴 대학(미국), NREL(미국), 토론토 대학(캐나다) 등 해외 대학으로의 파견 연구를 활발히 진행하며, 연구실 출신으로 총 8명의 교수진(KAIST, 한양대학교 2명, GIST, 숭실대학교, 서울과학기술대학교, 과학기술연합대학원 대학교, Nankai 대학교), 기업 연구원, 국책연구소 및 벤처 기업이 등을 배출하여 국내외적으로 연구 분야를 이끌고 있다.

2. 주요 연구분야

2.1 금속 할라이드 페로브스카이트 기반 발광 소자

금속 할라이드 페로브스카이트 소재는 기존의 유무기 발광체 대비 뛰어난 색순도 및 저렴한 공정비용으로 차세대 발광소재로서 주목받고 있다. 본 연구실에서는 최초로 상온에서 멀티컬러 플렉서블 페로브스카이트 발광 소자를 발표하였다(*Adv. Mater.*, 2014), 하지만 여전히 상용화된 organic light-emitting diode(OLED) 기준으로 보았을 때 고효율은 요원해 보였던 페로브스카이트의 재료의 한계를 극복하는 방법을 제시하여 세계 최초로 고효율 페로브스카이트 발광소자를 보고하였으며(*Science*, 2015), 2014년에 8건의 패밀리 특허를 출원하여 이 분야에서 가장 앞선 원천 특허를 보유하고 있다. 특히 본 연구실에서 보유하고 있는 페로브스카이트 나노 결정 소재 관련 특허는 광범위한 범위로 적용되는 원천특허로, 대한민국의 디스플레이 역사에서 원천 소재를 보유하게 된 것은 디스플레이 역사에서 최초이다.

현재는 페로브스카이트 소재의 성장 방식에 따라 분류하여 i) 전구체(precursor) 기반의 나노입자 모사 다결정, ii) 콜로이드 형태의 나노입자의 두 가지 접근 방향으로 활발한 연구를 진행 중이다. ‘나노입자 모사 다결정 박막’ 연구는 연구재단 리더연구단(창의연구과제) 사업으로 지원을 받아 연구를 수행하고 있다.

2.1.1 페로브스카이트 나노입자 모사 발광 소자

본래 페로브스카이트 다결정 박막은 전하가 쉽게 확산하고 표면 결함에 의해 엑시톤이 소실되어 발광체로 사용되기에는 재료적 한계가 있었다. 이를 해결하고자, 나노입자를 모사한 작은 결정 크기의 다결정 구조를 구현하여 강한 전하구속과 안정적인 발광 특성을 갖는 고효율 페로브스카이트 발광 소자를 제작하고자 연구에 몰두하였다. 페로브스카이트 결정크기를 제어하기 위해 순간적인 과포화와 결정화를

유도하는 나노결정 고정화(nanocrystal pinning, NCP) 공정을 도입하여 100 nm 이하의 작은 결정 크기를 가지는 균일한 페로브스카이트 다결정 박막을 형성하였다. 발광 특성이 개선된 다결정 박막을 기반으로, 당시 획기적으로 향상된 8.53%의 외부 양자 효율을 보고하였다(*Science*, 2015).

더 나아가, 결정립 및 결정 내부의 결함을 제어하면서 강한 양자 구속 효과를 얻어낼 수 있는 인-시츄 코어셸(in-situ core-shell) 나노입자 합성 기술을 개발하였다(*Nature*, 2022). (그림 2). 다결정 페로브스카이트 표면에 존재하는 결함의 이온성을 이용하여, 인산 기반의 짧은 리간드인 benzylphosphonic acid(BPA)와의 공유결합을 유도하여 결정 크기를 10 nm 크기로 획기적으로 줄인 페로브스카이트 코어-BPA 셸 형태의 나노입자를 합성해내었다. 본 구조는 매우 작은 입자 크기로 높은 양자 구속 효과를 나타내는 동시에, 짧은 BPA 리간드로 인한 높은 전하 주입을 달성할 수 있는 이상적인 페로브스카이트 발광체 형태로, 이를 활용하여 페로브스카이트 발광 소자가 도달 가능한 이론상 최고값에 근접한 28.9%의 외부 양자효율을 달성하였다. 뿐만 아니라, 소자 수명(31,808 h, T_{50} 100 nit) 및 휘도($473,990 \text{ cd m}^{-2}$)에서도 상용화에 근접한 수준의 세계 최고의 소자를 구현하였다(*Nature*, 2022).

2.1.2 콜로이드 페로브스카이트 나노결정 기반 발광 소자

콜로이드 페로브스카이트 나노결정은 수 nm ~ 수십 nm 크기의 작은 결정으로, 엑시톤의 효과적인 공간적 구속을 통해 높은 발광효율을 가질 수 있다. 하지만 나노결정의 표면에 위치한 리간드가 쉽게 탈착되고, 엑시톤의 결함을 방해하는 결함이 발생함에 따라, 고효율 발광소재를 위해서는 결함을 효과적으로 제어하는 방안이 필요하다. 본 연구실에서는 guanidinium(GA) 유기 양이온을 나노 결정에 도입하여, 나노 결정 내부와 표면에 존재하는 결함을 모두 제어하여 매우 높은 발광 효율(90% 이상)을 달성하였다(그림 3). 또한 페로브스카이트 나노 입자 박막 상부에 할라이드 기반 1,3,5-tris(bromomethyl)-2,4,6-triethylbenzene(TBTB) 물질을 결함 제거층으로 도입하여 잔여 결함을 제거하였다.

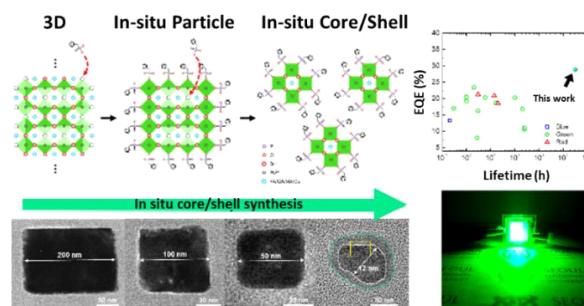


그림 2. 인-시츄 코어셸 공정의 개념도 및 이를 통한 고효율 고안정성 페로브스카이트 발광 소자 달성 현황(*Nature*, 2022).

이를 통해 당시 세계 최고의 외부양자효율(23.4%) 및 전류효율(108 cd A^{-1})을 갖는 페로브스카이트 발광 다이오드를 제작하였다(*Nature Photonics*, 2021).

이와 더불어 본 연구실은 기존 스핀코팅을 대체할 수 있는 새로운 대면적 코팅 방법(m-bar coating)을 개발하였다. 용액을 빠르게 증발시키는 과정을 포함하는 m-bar coating은 대면적에서도 작고 균일한 결정크기를 갖는 페로브스카이트 박막을 형성하고, 이를 통해 102 mm^2 와 900 mm^2 픽셀 크기에서 각각 22.5%와 21% 이상의 외부 양자효율을 갖는 대면적 페로브스카이트 발광 다이오드를 성공적으로 제작하였다(*Nature Nanotechnology*, 2022). 이러한 연구는 고효율 발광소자 개발에 중요한 역할을 할 뿐만 아니라, 디스플레이, 조명, 태양전지 등 다양한 분야에서도 응용 가능한 기술적인 진전을 제시하고 있다.

2.2 고유신축성 광전 소자

고유신축성 광전소자는 웨어러블 기기의 중요한 구성 요소로, 센서 신호를 시각화하는 데 활용된다. 그러나 기존의 신축성 발광 소자는 은 나노와이어(AgNW)와 같은 전극 재료의 전하 주입 특성이 낮아 효율이 낮다는 한계가 있었다. 이에 따라 전도성이 높고 전자 주입이 용이한 새로운 전극 소재의 개발이 필요했다.

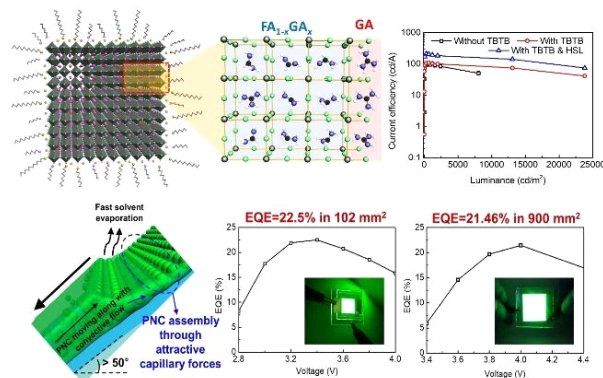


그림 3. 콜로이드 페로브스카이트 나노결정 기반 발광 소자(*Nature Photonics*, 2021, *Nature Nanotechnology*, 2022).

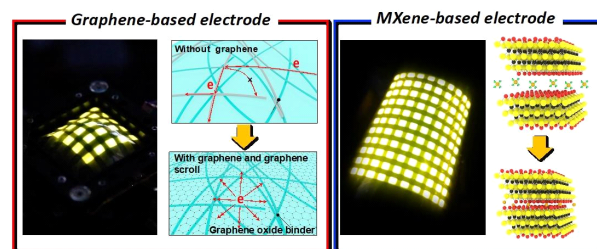


그림 4. 그래핀과 맥신을 전극으로 사용한 고유신축성 패시브 매트릭스 유기 발광 다이오드(*Advanced Materials*, 2022).

본 연구실에서는 이러한 문제를 극복하기 위해 그래핀 층을 도입하여 은 나노와이어의 한계를 극복하는 신축성 전극을 개발했다(그림 4). 2차원 구조의 그래핀 층은 전하 확산을 촉진시키고 전자 주입을 효율적으로 가능하게 한다. 또한 해당 전극은 양극과 음극 모두로 사용할 수 있어 신축성 전극 재료에 있어서 큰 발전을 이루었다. 이전 연구들은 주로 신축성 양극 재료에 초점을 맞추었지만, 이 연구에서는 새로 개발된 고분자 전해질을 전극에 코팅하여 3.57 eV의 낮은 일함수를 갖는 음극을 생성하는데 성공하였다. 해당 전극을 사용해 공기 중에서도 유지되면서 20.3 cd/A 의 효율을 가지는 고효율 신축성 발광 소자를 구현하였으며, 이는 현재까지 달성된 최고 효율을 보여주었다. 더불어 이 기술을 적용하여 3인치 5×5 패시브 매트릭스 고유신축성 발광 소자를 포함한 대형 장치에 적용시켰다(*Advanced Materials*, 2022).

고유신축성 유기 발광 다이오드(intrinsically stretchable OLED, ISOLED)의 용액 공정을 개선하기 위해 그래핀 대신 2011년에 발견된 2차원 소재인 맥신(MXene)을 도입했다. 맥신은 전이 금속 카바이드 또는 질화물의 몇 개 원자 층으로 이루어져 있으며, 금속과 유사한 전기 전도성과, 목적에 맞게 조정 가능한 표면 및 전자적 특성을 가지고 있다. 이러한 이점에도 불구하고, 맥신의 좋지 못한 환경적 안정성과 전극 및 유기 계면에서의 전하 주입 장벽으로 인해 사용이 제한된다는 한계가 있다. 본 연구실에서 표면 및 계면 공정을 통해 개발한 맥신 전극은 안정성이 뛰어나면서도 높은 전도성과 5.84 eV의 일함수를 가진다. 이를 통해 맥신 박막의 환경 안정성 문제를 해결하면서 동시에 맥신의 전기적 특성을 유지하였다(*Advanced Materials*, 2022).

2.3 유기반도체 기반 인공 시냅스 및 인공 신경

인공지능기술이 고도화됨에 따라 다양한 신경망 기반 알고리즘이 개발되고 있으나, 기존 CMOS 반도체 소자를 이용하여 소프트웨어를 구동할 시 높은 에너지 소모량, 낮은 집적도, 낮은 연산 속도 등의 한계점이 존재한다. 이에 반해 인체의 신경계는 매우 낮은 에너지 소모와 함께 연산 및 신호 전달을 효율적으로 처리한다. 따라서 본 연구실에서는 신경계의 기본 구성 단위인 뉴런, 시냅스를 모사한 소자 제작에 대한 연구를 진행하고 있다. 용액 공정, 나노와이어 프린팅, 열증착법 등의 방법을 이용하여 ion-gel-gated 트랜지스터, floating-gate 트랜지스터 등의 여러 구조의 인공 시냅스 소자를 폭넓게 연구하며, 최근 floating-gate 트랜지스터 및 자외선 감응 이차원 소재를 이용하여 시신경을 모방한 연구 또한 진행하였다(*Advanced Materials*, 2020).

또한 유기 인공 시냅스와 함께 고유수용기를 모사한 센서, 인공 뉴런, 유기체 다리 근육에 신호를 전달하기 위한 전극을 연결한 시스템인 구심성 인공 신경을 개발하였다(그림 5).

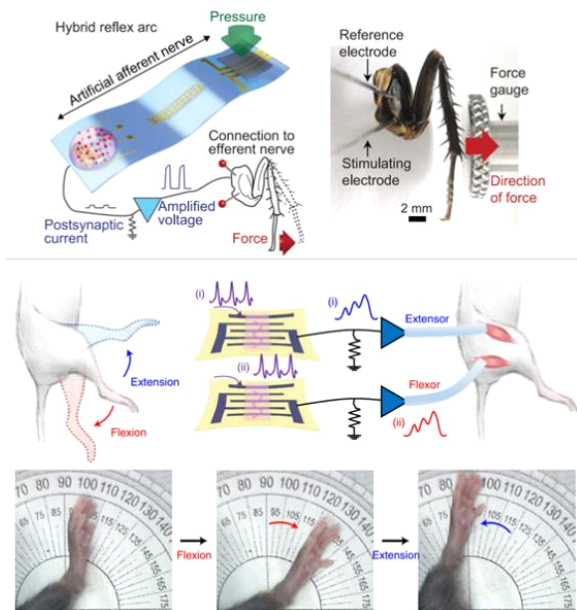


그림 5. 뉴로모픽 유연/신축성 인공신경을 이용한 운동 신호 전달 (*Nature Biomedical Engineering*, 2022).

구심성 인공 신경을 바퀴벌레의 다리에 연결하여 센서가 신호를 감지함에 따라 바퀴벌레 다리의 움직임을 유도하였다 (*Science*, 2018). 이후 신축성을 갖는 고유수용성감각 인공 신경을 개발하여 운동 신경이 마비된 쥐의 끊어진 신호 전달 경로를 통과하여 다리를 움직이기 위한 운동 신호를 전달하는데 성공하였다(*Nature Biomedical Engineering*, 2022). 다리의 움직임과 세기를 인공 시냅스의 발화 속도를 통해 조절할 수 있기에 더 섬세한 움직임을 유도할 수 있다. 또한 해당 고유수용성 감각 인공 신경은 제어를 위한 외부 컴퓨터 등의 도움 없이, 인공 신경 내에서 쥐의 다리 움직임을 감지하면서 인공 시냅스에 피드백을 실시간으로 전달해 다리가 과도하게 움직여 근육이 손상되는 것을 막았다. 또한, 이를 다리 근육의 수축기와 이완기에 부착하여 척추손상모델의 움직일 수 없던 쥐가 공을 차거나 런닝머신 위를 걷고 뛰게 하는 데 성공하였다. 이와 같은 동작을 기존 폰 노이만 구조 기반 처리 장치에 비해 약 150배 더 적은 에너지를 소모하며 작동시킬 수 있었다. 이러한 생체와 유사한 거동을 보이는 인공 시냅스 및 인공

신경 개발을 통해 유기체의 여러 생명활동을 모사하거나 직접 조절하는 연구를 진행하고 있다.

3. 연구실 현황 및 비전

올해 15 주년을 맞는 “유연 나노, 신경모사, 에너지 전자소자 연구실”은 유/무기 소재 및 저차원 소재를 이용한 발광소자, 광전소자, 뉴로모픽 전자소자 등의 연구를 지속해왔으며, 현재 270여 편 이상의 국내외 학술 논문(피인용횟수: 28,000회), 그리고 *Nature/Science* 본지 3편과, 자매지 19편에 달하는 우수한 연구 성과를 달성하고 있다. 이러한 기술을 바탕으로, 현재는 페로브스카이트 발광소자에 대해 상용화 수준에 준하는 안정성에 도달하기 위한 기술 개발 및 대면적 소자 공정 개발을 목표로 연구 진행 중이다. 이제는 상업화에 더 가까워진 페로브스카이트 발광 소자 분야에 대해 서울대학교 교원 창업(에스앤디스플레이 주식회사)을 이루어 냈고 전세계 페로브스카이트 발광 재료 및 소자 기술의 흐름을 선구적인 역할로 주도하고 있다. TV, 모니터, 태블릿, 휴대폰에 광범위하게 적용이 가능한 발광 물질 개발을 하고 있으며, 최근에는 AR/VR용 페로브스카이트 발광 재료, 패턴 된 발광 픽셀, 고해상도 발광 소자에 대한 연구를 집중하고 있다. 더불어 고유신축성 물질 및 소자 공정 기술 개발을 통해 신축성 발광소자의 발광 특성 및 기계적 안정성을 향상시켜 웨어러블 디바이스에 적합한 정보 표시소자 개발을 목표로 활발히 연구 중에 있으며, 유기반도체 기반 인공 시냅스 및 인공 신경 분야에 대해 저차원 소재, 유/무기 하이브리드 등의 소재 다양화와 함께 뉴로모픽 컴퓨팅, 뉴로모픽 로보틱스, 그리고 뉴로모픽 바이오전자소자와 같은 시냅스 소자의 응용성 확대를 목표로 연구하고 있다. 또한 유기체의 신경 신호 전달의 정교성을 높인 인공 신경 구현에 대한 연구를 활발히 진행 중이며, 다양한 유기 반도체 및 페로브스카이트 반도체 재료 기반하여 뉴로모픽 디스플레이 기술 개발을 도입하여 연구하고 있다. 이러한 디스플레이/웨어러블/뉴로모픽 기술은 잘 융합되어 대한민국의 기간산업인 디스플레이 산업과 더불어 미래 웨어러블/IoT/헬스케어 관련 산업에 크게 기여하여 인간의 편안한 삶과 건강한 삶의 증진에 크게 기여하고자 한다.



그림 6. 유연 나노, 신경모사, 에너지 전자소자 연구실 15주년 기념 행사.