Journal of the Korean Society of Marine Engineering, Vol. 43, No. 6 pp. 450~454, 2019
J. Korean Soc. of Marine Engineering (JKOSME)
https://doi.org/10.5916/jkosme.2019.43.6.450

ISSN 2234-7925 (Print)
ISSN 2234-8352 (Online)
Original Paper

전도성 그래핀 페이스트로 제작된 전극을 이용한 완전탄소 기반 플렉시블 전계효과 트랜지스터

김병국[1] · 오현수[2] · 윤 영† · 정수연[3] · 정승열[4]

(Received February 28, 2019 ; Revised May 22, 2019 ; Accepted May 27, 2019)

Flexible all-carbon field effect transistor comprising electrodes fabricated from conductive graphene paste

Byeongguk Kim[1] · Hyun-Soo Oh[2] · Young Yun† · Sooyeon Jeong[3] · Seung Yol Jeong[4]

요약: 탄소나노물질인 탄소나노튜브와 그래핀은 높은 전하 이동도, 화학적 안정성, 훌륭한 유연성 등의 우수한 특성을 가지고 있으므로 유연한 전자장치 개발에 활발히 연구되고 있다. 본 논문에서는 전도성 그래핀 페이스트 용액 공정을 이용하여 FET의 소스, 드레인 전극을 제작하였으며, 채널층 제작을 위해 SWCNT(Single-walled cabon nanotube)를 사용하였다. 제작된 유연한 전계 효과 트랜지스터는 P형 특성을 나타내며 저전압에서 동작한다. 측정 결과에 의하면 본 논문의 FET는 $3.73 cm^2/Vs$의 이동도를 보였으며, 이는 기존의 CNT기반 FET의 약 12배 정도의 높은 수치이다.

주제어: 그래핀, 탄소 나노튜브, 용액 공정, 유연한 전계 효과 트랜지스터

Abstract: Carbon nanotubes and graphene are nanocarbon materials that possess several properties such as high charge mobility, chemical stability, and excellent flexibility, and they are actively studied for developing flexible electronic devices. In this study, source and drain electrodes were fabricated by employing a conductive graphene paste solution-based process, and single-walled carbon nanotubes were incorporated in the channel layer. The fabricated flexible field effect transistor (FET) indicated p-type characteristics and required a low voltage for operation. Furthermore, evaluation results demonstrated that the fabricated FET had an effective mobility of $3.73 cm^2/Vs$, which is twelve times the effective mobility of a conventional carbon-nanotube-based FET.

Keywords: Graphene, Carbon nanotube, Solution-based process, Flexible field effect transistor

1. 서 론

최근 기술의 발달로 인해 전자장치의 소형화와 함께 유연한 전자 장치에 대한 연구가 증가하고 있으며 더 나아가 전자정보기술, 의료분야, 군사, 환경 등 다양한 분야에서 응용되고 있다**[1]**. 다양한 분야에서 플렉시블 기반의 디바이스에 응용하기 위해서는 소자의 소형화, 경량화와 동시에 저전력 구동이 필수적이다. 이로 인해 전계 효과 트랜지스터(Field effect transistor, FET)에서 더 높은 캐리어 밀도 및 더 낮은 동작 전압을 달성하는 것이 중요하며 연구되고 있다**[2]**.

B. C. Kang *et al.*은 유연한 PET 기판 상에 E-beam lithography를 이용하여 Au 전극과 단일벽 탄소 나노튜브를 이용하여 트랜지스터를 제작하였다. 이들이 제작한 트랜지스터는 $20\mu m$의 채널 길이를 가지며 $1.5 cm^2/Vs$의 이동도를 가진다**[3]**. 그러나 기존의 우수한 전기전도도를 가진 금(Au), 은(Ag) 등과 같은 금속 전극 재료를 유연한 전자장치에 적용할 경우 쉽게 균열이 발생한다.

또한 일반적으로 산화하프늄(HfO_2), 알루미늄 옥사이드(Al_2O_3) 그리고 지르코늄디옥사이드(ZrO_2) 등과 같은 high-k 유전체들이 전계 효과 트랜지스터의 절연체 물질로서 적용

† Corresponding Author (ORCID: http://orcid.org/0000-0003-1692-5641): Professor, Department of Radio Communication and Engineering, Korea Maritime & Ocean University, 727 Taejong-ro, Youngdo-gu, Busan 49112, Korea, E-mail: yunyoung@kmou.ac.kr, Tel: 051-410-4426
1 M.S Candidate, Department of Radio Communication and Engineering, Korea Maritime & Ocean University, E-mail: rqr784@kmou.ac.kr, Tel: 051-405-1050
2 Ph.D Candidate, Department of Radio Communication and Engineering, Korea Maritime & Ocean University, E-mail: ohs8415@kmou.ac.kr, Tel: 051-405-1050
3 Researcher Engineer, Nano Hybrid Technology Research Center, Korea Electrotechnology Research Institute (KERI), E-mail: sooy27@keri.re.kr, Tel: 055-280-1679
4 Senior Research Engineer, Nano Hybrid Technology Research Center, Korea Electrotechnology Research Institute (KERI), E-mail: syjeong@keri.re.kr Tel: 055-280-1679

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.

Copyright ⓒ The Korean Society of Marine Engineering

되고 있다. 이러한 전계 효과 트랜지스터의 경우 제작과정에서 진공 공정 및 고온 공정이 필요하기 때문에 공정 비용이 높으며 플렉시블 디바이스에 적용하기 힘든 단점이 있다 **[4][5]**.

이러한 문제의 대안으로 플렉시블 디바이스를 구현하기 위한 소재와 공정기술이 개발되고 있다. 플렉시블 디바이스의 전극 소재로 탄소나노물질((Nanocarbon material)은 중요한 후보 물질로 선택되어 왔다. 그래핀(Graphene)과 탄소나노튜브(Carbon nanotube, CNT)는 높은 전하 이동도, 높은 전기 전도도, 화학적 안정성, 훌륭한 유연성 등의 우수한 전기적, 기계적 특성을 가지고 있으며 이들을 잉크재료로 이용하면 유기물 재료의 낮은 성능과 무기물 재료의 높은 공정온도에 대한 문제점을 해결할 수 있어 기존 소재의 한계를 뛰어넘는 차세대 신소재로 다양한 응용 분야에서 활발히 연구되고 있다**[1]-[7]**.

H. Koo 등은 gravure 공정을 이용하여 유연한 PET 기판상에 SWCNT 전극과 채널을 가진 트랜지스터를 제작하였다. 이들이 제작한 트랜지스터는 $30\mu m$의 채널 길이를 가지며 $0.3cm^2/Vs$의 낮은 이동도를 가진다**[6]**. 이러한 낮은 이동도를 가지는 이유는 다음과 같다. 전극과 채널을 모두 탄소 나노튜브로 트랜지스터를 제작할 경우, 탄소 나노튜브의 방향성 배열을 완벽히 제어하고 반도체성/도체성 탄소 나노튜브를 완벽하게 분리하기가 매우 힘들기 때문이다.

따라서, 본 논문에서는 플렉시블 디바이스에 적용하기 위해 고온, 진공 공정이 필요 없는 광식각법(Photolithgraphy)과 doctoer blade, drop casting 공정을 이용하여 rGO 페이스트를 S/D 전극재료로써 사용하고, SWCNT를 채널층으로 하는 완전탄소기반 전계효과 트랜지스터를 제작하였다. 측정 결과에 의하면 본 논문의 FET는 $3.73cm^2/Vs$의 이동도를 보였으며, 이는 기존의 CNT기반 FET**[6]**의 약 12배 정도의 높은 수치이다. 이러한 높은 이동도와 탄소 나노 물질의 큰 비표면적과 가스 흡착 및 탈착능력을 가진 트랜지스터를 이용하여 선박, 해양 환경 표적 가스 검출에 필요한 고감도, 소형 가스 센서에 응용할 수 있다.

2. 용액 기반 공정 FET 제작

2.1 전극 및 채널 물질

Figure 1은 탄소 나노튜브 현탁액과 rGO 페이스트 이다. 본 논문에서 사용된 높은 전기 전도도를 지닌 rGO 페이스트는 흑연을 강산으로 산화 처리하여 그래핀 산화물(Graphene Oxide, GO)로 분산 및 박리 시킨 다음 열처리 과정을 통해 산소를 환원시켜 환원된 그래핀 산화물(Reduced Graphene Oxide, rGO)를 만든다. 분산 및 박리된 그래핀 산화물은 여러 가지 산소 기능기를 가지게 되며 산소 기능기에 의해 물을 포함한 여러 유기 용매에 분산이 가능하다. **Figure 2**는 환원된 그래핀 산화물의 합성에 대한 화학적 경로를 보여준다. 이 과정을 통해 개질된 환원된 그래핀 산화물을 용액 및 페이스트로 합성한다. 사용된 rGO 페이스트는 한국 전기연구원(Korea Electrotechnology Reseearch Institute, KERI)에서 개발되었다**[7]**.

전계 효과 트랜지스터의 채널 물질로서 사용된 반도체성 단일벽 탄소 나노튜브(Semiconducting Single-walled carbon nanotube, S-SWCNT)는 탄소 나노튜브를 N-Methyl-2-pyrrolidone(NMP) 용매를 이용하여 분산시킨 후 원심분리기(Centrifuge)를 이용하여 뭉쳐진 탄소 나노튜브를 분리하여 반도체성 단일벽 탄소 나노튜브 현탁액(S-SWCNT suspension)을 준비하였다.

Figure 1: Carbon nanotube suspension and rGO paste

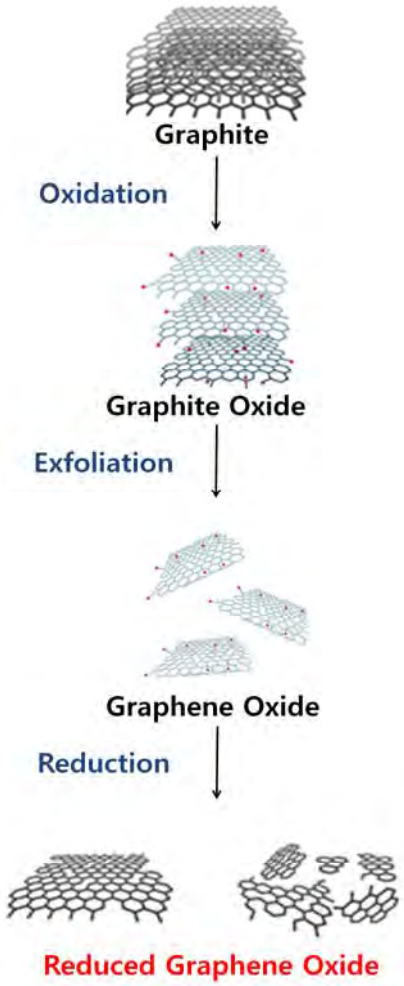

Figure 2: Scheme showing a chemical route to the synthesis of Reduced Graphene Oxide

2.2 FET 전극 및 채널 제작

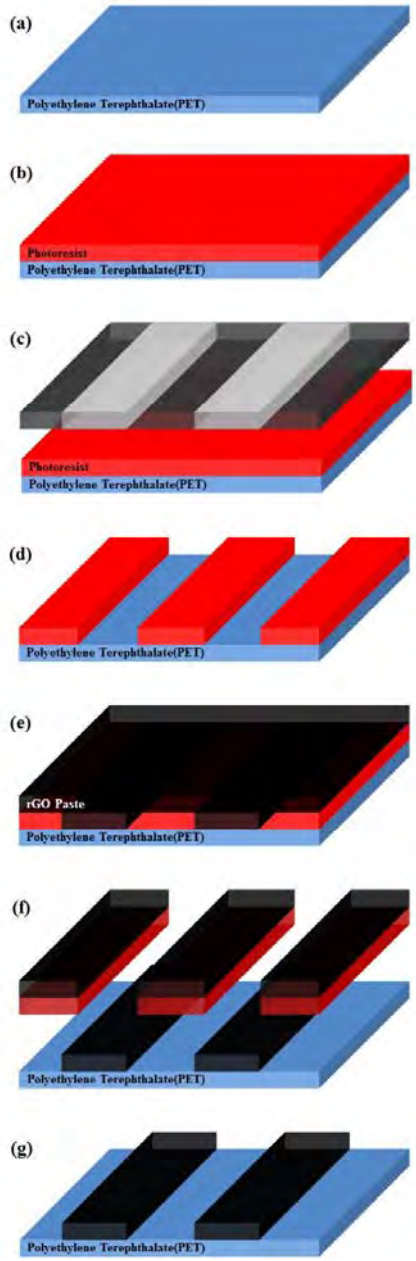

Figure 3: Process of the Photolithography (a) Substrate cleaning (b) Photoresist coating (c) Mask align and UV exposure (d) Development (e) rGO paste coating (f) Lift-off (g) A structure of transistor's electrode.

탄소나노물질 기반 트랜지스터를 제작하기 위해 **Figure 3**에서 나타냈듯이 포토리소그래피(Photolithography) 공정이 수행된다. 유연한 PolyEthylene Terephthalate(PET) 기판을 아세톤(Acetone), 아이소프로필 알코올(Isopropyl alcohol), 탈이온수(Deionized water) 순으로 세척하였다. 그 후 스핀코팅(Spin coating)을 이용하여 포토레지스트(AZ-5214E)를 $2\mu m$ 코팅한 다음 90℃ 오븐에서 10분 동안 열처리 하였다. 열처리 한 샘플을 MDA-60MS 장비를 사용하여 마스크를 하드 접촉된 각 샘플에 정렬시키고 60초 동안 자외선(Ultraviolet, UV)에 노출 시켰다. 자외선에 노출된 샘플은 포토레지스트 현상액(AZ-300MIF)에서 1분 동안 현상된 후 물로 세척되었다. 그 후 3-aminopropyltriethoxysilane(APTES) 자기조립 단분자막(SAM)을 형성하여 PET 기판을 친수성 표면처리 하였다. 친수성 표면 처리 후 닥터 블레이드(Doctor blade) 공정을 이용하여 rGO 페이스트를 증착시켰다. 그 후 리프트 오프(Lift-off) 처리하여 잔류 포토레지스트 제거와 트랜지스터의 소스와 드레인 전극을 형성하였다. 마지막으로 탄소 나노튜브 현탁액을 Drop casting 기법을 이용하여 소스와 드레인 사이에 채널층을 형성하였다. 이 때 상온에서 Drop casting 기법을 이용하여 채널층을 형성할 경우 Coffee ring effect 현상이 발생하여 채널 경로가 길어지게 된다. 또한 완전히 건조시키지 않으면 탄소 나노튜브 현탁액의 잔류 용매에 의해 측정 시 트랜지스터가 타버리는 현상이 나타난다. 이를 방지하기 위해 90℃ 핫플레이트 위에서 Drop casting 기법을 사용하였으며 채널층 형성 후 1 시간동안 열처리하였다. **Figure 4 (a)**는 제작된 트랜지스터의 광학사진이며 **Figure 4 (b)**는 용액 공정으로 제작된 탄소 나노튜브 채널의 SEM 사진이다. 제작된 트랜지스터의 채널 폭과 길이는 각각 $100\mu m$, $20\mu m$ 이다.

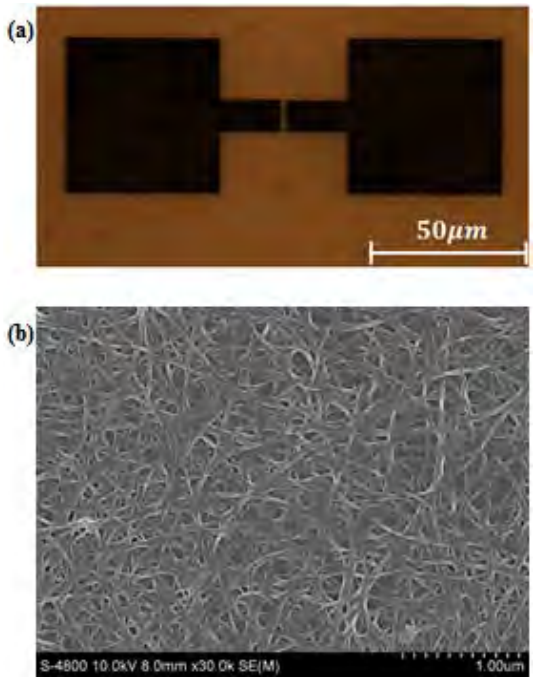

Figure 4: (a) Optical microscope photograph, (b) SEM image

3. FET 측정 및 성능 평가

3.1 FET 측정

Figure 5와 같이 탄소나노물질 기반 트랜지스터의 성능을 측정하기 위해 게이트 절연체로 이온성액체(Ionic liquid)를

사용하였다. 본 논문에서 사용된 이온성 액체는 $3\mu F/cm^2$의 단위면적당 커패시턴스를 가지고 있다. 제작된 트랜지스터는 진공 프로브 스테이션(Vacuum probe station)을 이용하여 측정하였다.

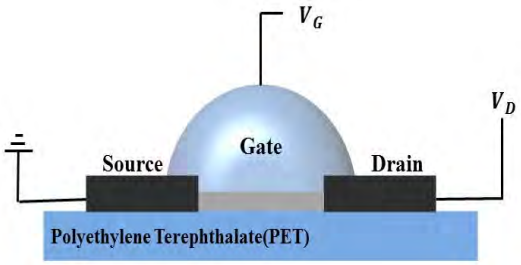

Figure 5: A structure of nanocarbon-based transistor.

3.2 FET 성능 평가

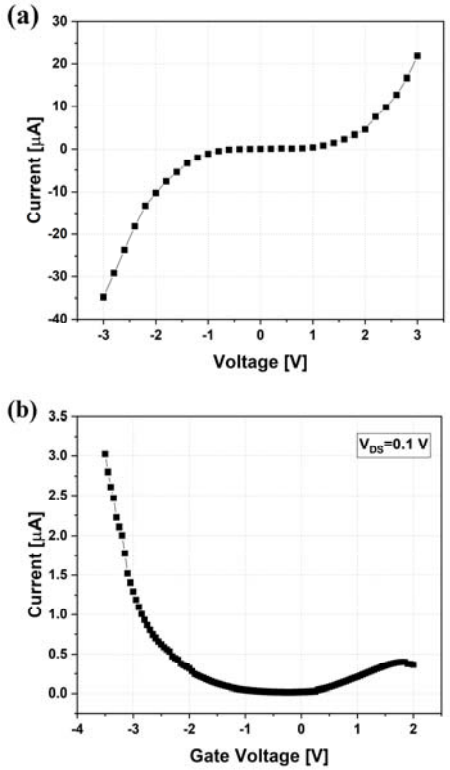

Figure 6: (a) Current-Voltage characteristics of transistor. (b) $I_D - V_G$ characteristics of nanocarbon-based transistor.

소자 성능을 평가하기 위해 제작된 트랜지스터의 전기적 특성을 고찰하였다. FET의 소자 성능에서 이동도는 전력소모, 스위치 속도와 관련이 있다. 이러한 특성은 트랜지스터의 출력 및 전달 곡선을 통해 추출할 수 있으며 **Figure 6**은 제작된 트랜지스터의 출력 특성 곡선(Output characteristic curve) 및 전달 특성 곡선(Transfer characteristic curve)이다. 제작된 트랜지스터의 전계 효과 이동도는 다음과 같은 식으로 구할 수 있다.

$$\mu_{FE} = \frac{L_{CH}}{WC_G V_{DS}} \frac{\partial I_D}{\partial V_G} \quad (1)$$

여기서, W 와 L_{CH}는 채널의 폭과 길이이며, C_G는 게이트 커패시턴스이며, V_{DS}는 드레인-소스 전압이며, V_G는 게이트 전압이며, I_D는 드레인 전류이다.

제작된 트랜지스터는 0.1 V의 드레인-소스 전압(V_{DS}), -3.5 V에서 2 V 범위의 게이트 전압(V_G), 그리고 $2\times10^{-2}\,Torr$ 이하의 진공 상태에서 측정되었다. 트랜지스터의 출력 특성 곡선을 통해 제작된 트랜지스터는 쇼트키 접합(schottky contact)을 형성함을 알 수 있다. 또한 트랜지스터의 전달 특성 곡선을 통해 게이트 전압 의존성을 보면 음의 게이트 전압을 인가한 경우 드레인 전류가 증가하며 양의 게이트 전압 쪽으로 향할수록 전류가 감소된다. 이는 채널 내에서의 전류가 주로 정공에 의해서 일어남을 알 수 있으며, P형 트랜지스터 특성을 가짐을 알 수 있다. 선형(linear) 동작 영역에서 추출한 결과 제작된 완전탄소 기반 트랜지스터는 $3.73 cm^2/Vs$의 이동도를 가진다.

Table 1: Comparison with previous research transistors

FET	Mobility (cm^2/Vs)	Channel layer	Electrode
FET-1 **[6]**	0.3	SWCNT (Random)	SWCNT - Based Ink
FET-3 **[8]**	2.27	SWCNT (Random)	m-SWCNT
FET-4 **[Paper]**	3.73	SWCNT (Random)	reduced - Graphene Oxide Paste

Table 1은 선행 연구들과 본 논문의 비교 데이터이다. 선행 연구와 본 논문 모두 랜덤 네트워크 구조의 탄소 나노튜브 채널층을 가진다. 전극과 채널 모두 탄소 나노튜브를 사용한 선행 연구의 트랜지스터**[6]**보다 본 논문의 트랜지스터의 이동도가 약 12배 더 높다. 이러한 이동도가 높은 이유는 다음과 같다. 선행 연구들의 경우 트랜지스터의 전극을 탄소 나노튜브로 제작하였다. 이러한 경우 전극에 사용된 탄소 나노튜브는 반도체성/도체성 탄소 나노튜브를 완벽하게 분리하기가 매우 힘들며 전극을 만들 경우 도체성 물질인 그래핀으로 만든 전극보다 저항이 높아지게 되는 이유 때문이다. 또한 선행 연구의 경우 커패시턴스가 $6nF/cm^2$, $0.69\mu F/cm^2$인 반면 본 논문은 $3\mu F/cm^2$의 높은 커패시턴스를 가진 이온성 액체를 사용하여 높은 출력 전류를 얻어 이동도가 높은 것으로 사료된다.

4. 결 론

본 논문에서는 기존의 CNT 전극기반 FET에서 문제가 되었던 높은 저항에 의한 이동도 악화문제를 개선하기 위

하여, rGO 페이스트로 제작된 전극을 사용한 완전탄소기반 FET를 제작하였다. 제작된 전계 효과 트랜지스터는 저전압 구동 및 P형 트랜지스터 특성을 보였으며, 채널층 형성, 전극 증착 과정에서 고온 및 진공 공정을 필요하지 않아 기존의 CNT 전극 기반 FET에 비해 공정절차가 간단하였다.

측정결과에 의하면 본 논문의 FET는 $3.73cm^2/Vs$의 이동도를 보였으며, 이는 기존의 CNT기반 FET의 약 12배 정도의 높은 수치이다. 본 연구의 제작방법은 액상페이스트를 사용하는 방법이므로, 하이브리드 재료로 이루어진 전극의 제작이 용이하며, 추후 rGO/고전도성 재료로 구성된 하이브리드 형태의 혼합물을 합성하면 저항을 낮추고 전도성을 향상시켜 더 높은 이동도를 달성시킬 수 있을 것으로 기대된다.

상기결과에 의하면 본 논문에서 제안한 rGO 페이스트 전극기반 완전탄소 FET는 가스 센서를 포함한 다양한 분야의 플렉시블 기반 전자기기에 유용하게 사용될 수 있을 것이다.

후 기

"이 논문은 2019년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2019R1F1A1048404)."

Author Contributions

Conceptualization, B. Kim, S. Y. Jeong and Y. Yun; Methodology, B. Kim, H. S. Oh and S. Jeong; Software, B. Kim and H. S. Oh; Validation, S. Y. Jeong and Y. Yun; Formal Analysis, B. Kim and S. Y. Jeong; Investigation, B. Kim and H. S. Oh; Resources, S. Jeong and S. Y. Jeong; Data Curation, B. Kim; Writing–Original Draft Preparation, B. Kim; Writing–Review & Editing, B. Kim and Y. Yun; Visualization, B. Kim; Supervision, Y. Yun; Project Administration, Y. Yun; Funding Acquisition, Y. Yun.

References

[1] S. H. Kang and S. W. Hong, "Recent progress in flexible/wearable electronics," Journal of Welding and Joining, vol. 32, no. 3, pp. 34-42, 2014 (in Korean).

[2] N. Seong, T. Kim, S. B. Ji, H. Kim, and Y. Hong, "Low-voltage single-walled carbon nanotube thin-film transistors fabricated by low-temperature solution-process," Proceedings of the Institute of Electronics Engineers of Korea, pp. 79-81, 2015 (in Korean).

[3] B. C. Kang and T. J. Ha, "Solution-processed single-wall carbon nanotube transistor arrays for wearable display backplanes," AIP ADVANCES, vol. 8, no. 1, 015305, 2018.

[4] B. J. Kim, H. Jang, S. K. Lee, B. H. Hong, J. H. Ahn, and J. H. Cho, "High-performance flexible graphene field effect transistors with ion gel gate dielectrics," Nano Letters, vol. 10, no. 9, pp. 3464-3466, 2010.

[5] S. K. Lee, H. Y. Jang, E. Choi, B. H. Hong, J. Lee, S. Park, and J. H. Ahn, "All graphene-based thin film transistors on flexible plastic substrates," Nano Letters, vol. 12, no. 7, pp. 3472-3476, 2012.

[6] H. Koo, W. Lee, Y. Choi, J. Sun, J. Bak, J. Noh, V. Subramanian, Y. Azuma, Y. Majima, and G. Cho, "Scalability of carbon-nanotube-based thin film transistors for flexible electronic devices manufactured using an all roll-to-roll gravure printing system," Scientific Reports 5, Article number: 14459, 2015.

[7] S. Y. Jeong, S. H. Kim, J. T. Han, H. J. Jeong, S. Y. Jeong, and G. W. Lee, "Highly concentrated and conductive reduced graphene oxide nanosheets by monovalent cation-π interaction: Toward printed electronics," Journal of Advanced Functional Materials, vol. 22, no. 15, pp. 3307-3314, 2012.

[8] F. Sajed and C. Rutherglen, "All-printed and transparent single walled carbon nanotube thin film transistor devices," Applied Physics Letters, vol. 103, no. 14, 143303, 2013.