

# Controlling the Properties of Graphene using CVD Method: Pristine and N-doped Graphene

## 화학기상증착법을 이용한 그래핀의 물성 조절: 그래핀과 질소-도핑된 그래핀

Sang Jun Park\*, Imbok Lee\*, Dong Jae Bae\*, Jungtae Nam\*, Young Hee Han\*\*, Byung Jun Park\*\* and Keun Soo Kim\*\*†  
박상준\*, 이임복\*, 배동재\*, 남정태\*, 박병준\*\*, 한영희\*\*, 김근수\*\*†

\* Department of Physics and Graphene Research Institute, Sejong University, 209 Neungdong-ro, Gwanjin-gu, Seoul, 143-747, Korea

\*\* KEPCO Research institute, Korea Electric Power Corporation, 105 Munji-Ro, Yuseong-Gu, Daejeon 34056, Korea

† kskim2676@sejong.ac.kr

### Abstract

본 연구에서는 그래핀의 인위적인 합성방법인 화학기상증착법을 활용하여 합성 파라미터들을 변화시켜줌으로써 그래핀의 물성을 조절하는 연구를 수행하였다. 먼저, 메탄가스를 탄소원으로 순수 그래핀을 합성하였고, 액상의 피리딘을 원료로 사용하여 질소가 도핑된 그래핀을 합성하였다. 각각의 그래핀의 물성은 라만 분광법, X선 광전자 분광법(XPS)을 통한 기초 광물성 측정과 게이트 전압에 따른 그래핀 채널의 전류-전압 응답특성을 통한 전기적 수송현상 측정에 의해 평가되었다. 메탄가스로 합성된 그래핀의 라만 분광 스펙트럼에서는 G-peak과 2D-peak가 선명히 보였고, XPS에서 C1s-peak가 선명하였고, 아울러 전하중성점은 게이트 전압 약 +4 V 정도에서 나타났다. 피리딘을 원료로 합성된 그래핀의 라만 분광 스펙트럼에서는 D-peak, G-peak 그리고 다소 약해진 2D-peak 등이 보였고, XPS에서는 C1s-peak은 물론 N1s-peak도 나타났으며, 전하중성점은 게이트 전압 약 -96 V 정도에서 나타났다. 결과적으로 우리는 화학기상증착법을 활용하여 그래핀의 물성을 성공적으로 조절하였다.

In this research, pristine graphene was synthesized using methane ( $\text{CH}_4$ ) gas, and N-doped graphene was synthesized using pyridine ( $\text{C}_5\text{H}_5\text{N}$ ) liquid source by chemical vapor deposition (CVD) method. Basic optical properties of both pristine and N-doped graphene were investigated by Raman spectroscopy and XPS (X-ray photoemission spectroscopy), and electrical transport characteristics were estimated by current-voltage response of graphene channel as a function of gate voltages. Results for CVD grown pristine graphene from methane gas show that G-peak, 2D-peak and C1s-peak in Raman spectra and XPS. Charge neutral point (CNP; Dirac-point) appeared at about +4 V gate bias in electrical characterization. In the case of pyridine based CVD grown N-doped graphene, D-peak, G-peak, weak 2D-peak were observed in Raman spectra and C1s-peak and slight N1s-peak in XPS. CNP appeared at -96 V gate bias in electrical characterization. These result show successful control of the property of graphene artificially synthesized by CVD method.

**Keywords:** Graphene, Chemical vapor deposition (CVD), pyridine( $\text{C}_5\text{H}_5\text{N}$ ), Doping, Controlling of Properties, 그래핀, 화학기상증착법, 피리딘, 도핑, 물성조절

### I. 서론

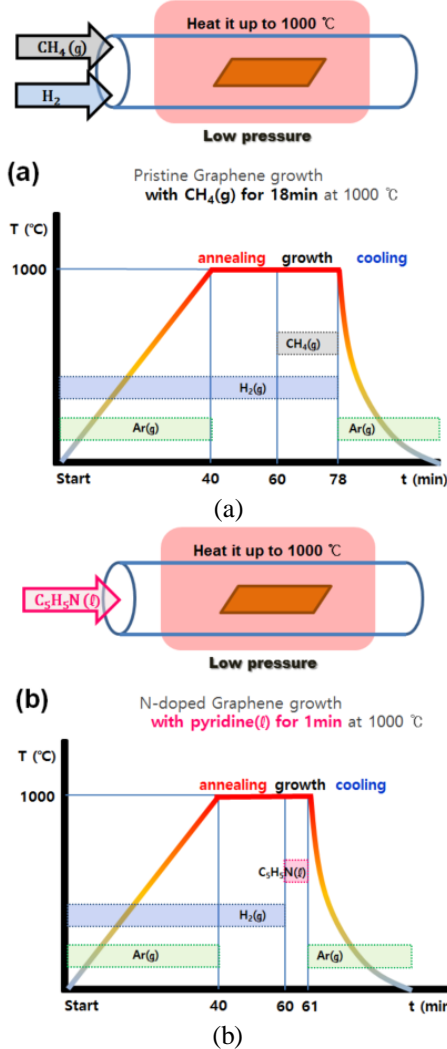
그래핀은 벌집모양의 육각형 판상구조를 가진 탄소 동소체중의 하나로써, 최근 폭발적으로 연구되고 있는 이차원 물질연구의 기폭제 역할을 한 물질이다. 그래핀은 우리가 일반적으로 많이 사용해온 연필심이나 샤프심의 원료인 흑연을 이루고 있는 기본 구성물질이다. 흑연은 층상구조를 가진 물질로, 그 흑연 층상 구조의 한 층에 해당하는 물질이 바로 그래핀이다. 사실, 그래핀은 오래 전부터 이론적으로 연구가 되어 그 물성이 우수할 것이라고 예상이 되어왔으나, 실험적으로는 증명되지 못했다. 이처럼 이론적으로만 알려져 있던 그래핀은 2004년 영국 맨체스터 대학교의 안드레 가임(Andre K. Geim) 교수와 콘스탄틴 노보셀로프(Kostya S. Novoselov)

박사에 의해, 천연의 흑연으로부터 스카치테이프를 활용하여 떼어내어, 기판[ $\text{SiO}_2(300 \text{ nm})/\text{Si}$  기판]에 문질러 광학 현미경으로 한 층을 관찰한 것에서 처음으로 발견되었다 [1].

초창기 천연의 흑연으로부터 떼어낸 한 층의 그래핀은 크기가 아주 작아서 현미경으로 고배율로 확대해야만 볼 수 있었고, 이론적으로 예측된 물성들 또한 수 나노미터에서 수십 마이크로미터 영역 내에서 국한되어 연구가 진행되었다. 그래핀의 전기적, 광학적 기계적, 열적 물성 등이 매우 우수하다는 이론적 예측들이 실험적으로 증명되어가면서 많은 연구자들이 그래핀 연구에 더욱 관심을 갖게 되었다. 그러던 중 4~5여년 세월이 흐른 뒤 그래핀을 화학기상증착법으로 니켈이나 구리 촉매 금속에 대면적으로 합성하는 방법에 대한 연구 결

과들이[2]-[5] 발표되었고, 이로써 그래핀은 육안으로도 식별가능하며 손으로도 다룰 수 있는 크기로 인위적 합

핀의 물성은 그래핀만을 원하는 기관으로 전사한 후, 라만분광법, X선 광전자 분광법(XPS)을 통한 기초 광물성 측정과 게이트 전압에 따른 그래핀 채널의 전류-전압 응답특성을 통한 전기적 수송현상 측정에 의해 평가되었다.



## II. 실험

본 연구에서는 원하는 소재를 디자인하여 인위적으로 합성할 수 있는 방법인 화학기상증착법을 활용하여 그래핀을 합성하여 물성을 조절하는 연구를 수행하였다.

화학기상증착법은 밀폐된 챔버 안에 원하는 소재의 구성원소를 기상으로 공급하여 원하는 기관에 다시 고체상의소재를 합성하는 기술로 보통 0차원, 1차원, 2차원, 3차원의 다차원 나노소재를 합성하고자 할 경우 쓰이는 전형적인 소재합성 방법들 중 하나이다. 본 연구에서는 대면적 그래핀의 물성을 조절하기 위하여 화학기상증착법에 의한 그래핀의 합성시, 주요한 파라미터들을 조절함으로써 순수 그래핀과 도핑된 그래핀 합성을 시도하고 기초적인 광물성과 전기물성을 평가하였다.

먼저, 메탄가스를 탄소원으로 구리 호일 위에 고품질의 순수 그래핀을 합성하였다. 탄소의 용해도가 상대적으로 낮은 구리를 촉매기관으로 하면 한 층의 그래핀이 구리표면에 전체적으로 고르게 합성된다.

Fig. 1은 본 연구를 통하여 최적화된 그래핀의 합성 조건을 시간에 대한 온도 프로파일과 가스 유량 등의 합성 파라미터들을 보여준다. Fig. 1(a)는 메탄을 활용한 순수그래핀 합성 조건, Fig. 1(b)는 피리딘을 활용한 질소 도핑된 그래핀의 합성 조건을 각각 보여준다.

Fig. 1(a)의 개략도와 같이, 3 cm(W) × 4 cm(L) × 4 μm(t) 크기의 구리호일을 켈츠 챔버 안에 넣고 로터리 펌프를 이용하여 진공(base pressure : ~ 10<sup>-4</sup> Torr 영역)을 유지한다. 진공도가 안정되면 수소(H<sub>2</sub>)가스 10 sccm 과 아르곤(Ar) 가스 100 sccm을 흘려주면서 약 40 분 동안 퍼니스의 온도를 1000°C까지 올려 준다. 온도가 1000°C에 도달하면, 아르곤(Ar) 가스는 차단하고 수소(H<sub>2</sub>)가스 10 sccm 분위기에서 약 20 분 동안 구리호일을 열처리한다. 이 과정을 통해서 구리호일의 표면에 있던 수분, 유기물 등을 포함한 이물질 그리고 표면 산화막들이 제거되고 아울러 촉매금속의 결정이 조건에 따라서 더 커질 수 있다. 열처리 공정이 끝나면, 메탄(methane; CH<sub>4</sub>) 15 sccm을 흘리며 18 분간 그래핀 합성을 한다. 합성이 끝나면 아르곤(Ar) 가스를 100 sccm 흘려주면서 시료의 온도를 상온까지 냉각시킨다.

다음으로 도핑을 통해 그래핀의 물성을 조절하기 합성하기 위해서 탄소와 수소만으로 구성된 메탄(CH<sub>4</sub>) 가스 대신, 탄소, 수소 그리고 질소로 구성된 피리딘(C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N)을 소스로 하여 질소가 도핑된 그래핀을 합성하였다.[Fig. 1(b) 참고] 상온에서 액체 상태인 피리딘을 CVD 장비와 연결된 시험관에 넣고 CVD 메인 챔버의 압력을 진공상태로 맞춰주고, 중간 게이지 밸브를 조절하여 열어주어 소스를 증기상태로 반응챔버에 공급하여 질소가 도핑된 그래핀을 합성하였다. 순수 그래핀 합성과 마찬가지로 수소(H<sub>2</sub>)가스 10 sccm 과 아르곤(Ar) 가스

Fig. 1. CVD 방법을 이용한 그래핀 합성조건. (a) 메탄가스를 소스로 한 순수그래핀 합성조건, (b) 피리딘을 소스로 한 질소 도핑된 그래핀의 합성조건.

성이 가능하게 되면서 기초연구에서 나아가 많은 응용 연구들이 기하급수적으로 늘었으며, 근래에는 산업계에서 사업화 관련 이슈로 많은 연구가 수행이 되고 있다.

한편, 그래핀이 우수한 고유물성을 갖기 때문에 이처럼 다양한 연구들이 전 세계적으로 아주 활발하게 진행되고 있긴 하지만, 천연 광물로부터 얻어진 그래핀의 경우 특별히 원하는 물성을 갖게 조절하는 것은 쉽지가 않다. 예컨대, 전자소자 응용의 경우에는 소재의 밴드갭, 다수 캐리어 타입, 전하 이동도, 일함수 등의 물성 조절이 아주 중요하다.

이에 본 연구에서는 그래핀의 인위적인 합성방법인 화학기상증착법을 활용하여 합성 파라미터들을 변화시켜줌으로써 그래핀의 물성을 조절하는 연구를 수행하였다. 먼저, 메탄가스를 탄소원으로 구리 호일 위에 고품질의 순수 그래핀을 합성하였고, 액상의 피리딘을 원료로 사용하여 질소가 도핑된 그래핀을 합성하였다. 각기 다른 탄소원과 다른 합성 조건으로 합성된 각각의 그래

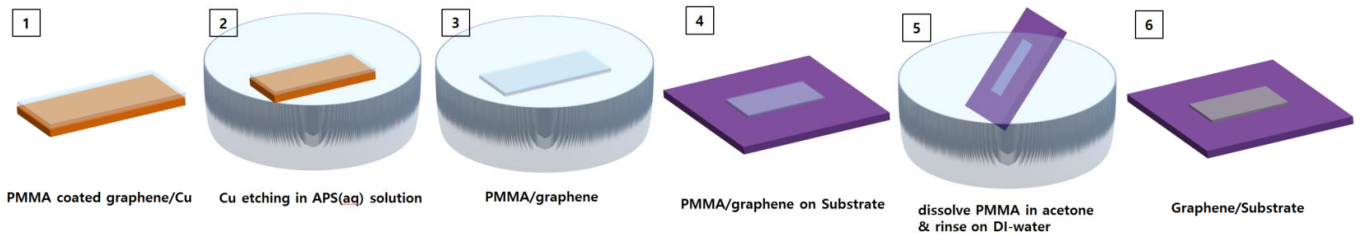


Fig. 2. PMMA 를 활용한 그래핀의 습식 전사 공정 모식도

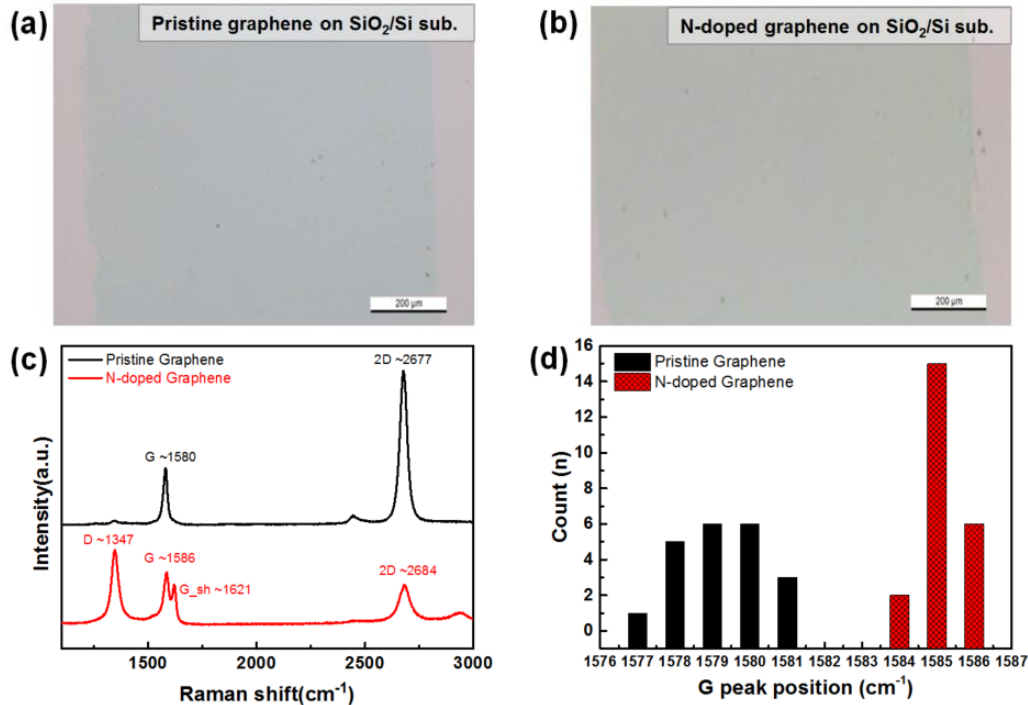


Fig. 3. 합성된 순수 그래핀 및 질소 도핑된 그래핀의 라만 분광 스펙트럼 분석. SiO<sub>2</sub>/Si 기판에 전사된 (a) 순수 그래핀과 (b) 질소 도핑된 그래핀 시료의 광학현미경 이미지. (c) 각각의 그래핀 시료(a: 검은 실선)와 (b: 빨간 실선)에 대한 라만분광 특성 그래프. (d) 각각의 그래핀 시료(a: 검은 막대)와 (b: 빨간 막대)에 대해 다양한 위치에서 분석된 라만응답의 G-peak 위치 분포에 대한 그래프(시료의 도핑 정도를 간접 반영).

100 sccm을 흘려주면서 약 40 분 동안 퍼니스의 온도를 1000°C까지 올려 준다. 온도가 1000°C에 도달하면, 아르곤(Ar) 가스는 차단하고 수소(H<sub>2</sub>)가스 10 sccm 분위기에서 약 20 분 동안 구리호일을 열처리한다. 열처리가 끝나면 수소를 차단하고 피리딘 공급라인의 게이지 밸브를 조절하여 기화된 피리딘을 공급한다. 이 때 쿨츠 반응챔버의 내부 압력은 1.6×10<sup>-1</sup> Torr가 되고 1 분 동안 합성을 하였다. 합성이 끝나면 피리딘 소스 공급밸브를 닫아서 차단, 퍼니스를 끄고 아르곤(Ar) 가스 100 sccm을 흘려주며 상온까지 냉각 시킨다.

위와 같은 조건하에서 합성된 각각의 그래핀 시료는 Fig. 2와 같은 PMMA(polymethyl methacrylate)를 활용한 습식 전사 공정을 통해서 그래핀만을 SiO<sub>2</sub>(300 nm)/Si 기판에 옮겨졌다 [6]. 그래핀이 합성된 구리호일 위에 1000 rpm으로 10 초, 4000 rpm으로 30 초의 조건으로 구리호일에 고르게 PMMA(950k C4)를 코팅한 후, 구리만을 선택적으로 녹여낼 수 있는 APS(Ammonium persulfate; 0.15 M) 식각액 위에 띄어 둔다. 구리가 모두 식각이 되

면 DI water로 옮겨 APS를 행귀 주는 과정을 3번에서 4 번 정도 반복하여 잔류 식각액을 충분히 씻어낸다. PMMA코팅되어 DI Water 수면에 떠있는 그래핀을 SiO<sub>2</sub>(300 nm)/Si 기판으로 떠서 전사를 한다. 그래핀이 기판 위에서 충분히 마르면 그래핀이 전사된 기판을 아세톤 속에 넣어 그래핀 위에 코팅 되어있는 PMMA를 제거한다. 그 후 IPA(isopropyl alcohol)로 아세톤 잔여물을 제거 하고 질소 건으로 조심스럽게 불어서 IPA를 건조시킨다.

이렇게 전사된 각각의 그래핀 시료들은 라만 분광 스펙트럼, XPS 그리고 게이트 전압에 따른 전류-전압 측정 등을 통해 기초적인 물성을 평가하였다.

### III. 결과 및 고찰

메탄가스로 합성된 순수 그래핀과 피리딘을 소스로 합성된 질소 도핑된 그래핀의 기초적 광학물성을 파악하기 위하여, Fig. 3에서 볼 수 있는 바와 같이 실리콘 기

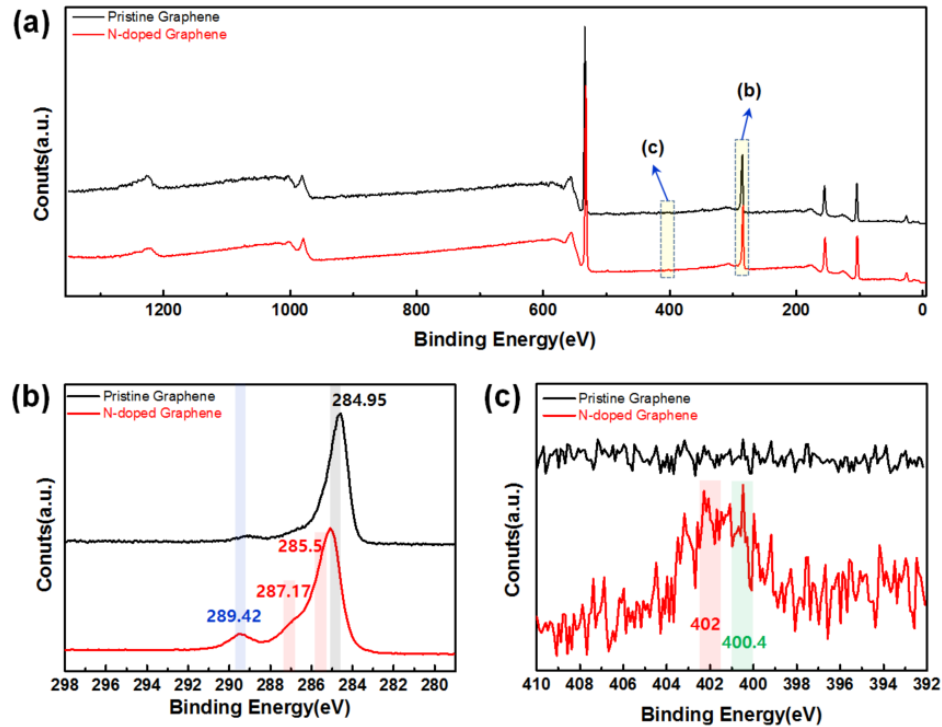


Fig. 4. 합성된 순수 그래핀 및 질소 도핑된 그래핀의 X선 광전자방출 분광 스펙트럼 분석. (a) 각각의 그래핀 시료의 0~130 eV 영역에서 XPS 응답 그래프(검은 실선: 순수 그래핀, 빨간 실선: 질소 도핑된 그래핀). (b) 279~298 eV 영역에서 각 시료에 대한 C1s-peak (탄소원자 결합) 관련 양상 분석 그래프. (c) 392~410 eV 영역에서 각 시료에 대한 N1s-peak (질소원자 결합) 관련 양상 분석 그래프.

판 위에 전사된 각각의 시료를 대상으로 먼저 라만 분광 스펙트럼(Renishaw inVia Raman Microscope\_ Laser  $\lambda = 514 \text{ nm}$  &  $P = 20 \text{ mW}$ )측정을 수행하였다.

메탄가스로 합성된 그래핀[Fig. 3(a) 시료]의 라만 분광 스펙트럼에서는 Fig. 3(c)의 검은 실선 그래프와 같이 D-peak( $1350 \text{ cm}^{-1}$  부근)는 거의 없고 G-peak( $1580 \text{ cm}^{-1}$  부근)과 2D-peak( $2677 \text{ cm}^{-1}$  부근)가 선명히 보였으며, 2D/G-peak의 세기 비율이 약 3정도로 품질이 아주 좋은 그래핀의 전형적인 라만 응답신호가 관측되었다. 또한, 피리딘을 원료로 합성된 질소-도핑된 그래핀[Fig. 3(b) 시료]의 라만 분광 스펙트럼에서는 강한 D-peak( $1347 \text{ cm}^{-1}$  부근)과 약간 청색편이(blue-shift)된 G-peak( $1586 \text{ cm}^{-1}$  부근), G-peak의 오른쪽 어깨 쪽에 G\_sh-peak( $1621 \text{ cm}^{-1}$  부근) 그리고 다소 약해진 2D-peak( $2684 \text{ cm}^{-1}$  부근) 등이 보였다. 이는 그래핀의 격자 사이에 질소가 불순물로 첨가됨으로써 결합과 관련된 포논 진동모드가 발생하고, 뒤틀린 격자간격, 달라진 원자 질량 그리고 불균일한 전하 분포 등에 의하여 G-peak의 위치 이동과 2D-peak 세기가 약해지는 것으로 질소의 도핑 효과가 반영된 결과의 간접적 증거로 볼 수 있다 [7][9]-[10]. Fig. 3(d)는 메탄가스로 합성된 순수 그래핀과 피리딘을 소스로 합성된 질소 도핑된 그래핀의 라만신호들 중 G-peak의 분포양상을 평가해본 막대 그래프로써 피리딘을 소스로 합성된 도핑된 그래핀[Fig. 3(b) 시료]의 경우가 메탄으로 합성된 그래핀[Fig. 3(a) 시료]의 경우보다 평균적으로 약  $6 \text{ cm}^{-1}$  정도 청색편이 되어, 안정적이고 고르게 도핑이 되었음을 알 수 있었다.

다음으로, 메탄가스로부터 합성된 순수그래핀과 피리딘을 소스로 합성된 질소 도핑된 그래핀의 간접적인 라만 분광스펙트럼 분석을 뒷받침하기 위해서, 직접적인 정성분석을 하기 위해서 XPS 분석을 시도하였다.

Fig. 4(a)와 같이 전체적인 survey 분석에서는 순수 그래핀과 도핑된 그래핀 모두 거의 유사한 양상을 보였으나, Fig. 4(b), (c)와 같이 탄소원자의 결합 성분인 C1s-peak 과 질소원자의 결합 성분인 N1s-peak에 대하여 좀 더 면밀히 들여다 보았다. Fig. 4(b)에서 보여지는 바와 같이 순수 그래핀(검은 실선 그래프)에서는  $284.95 \text{ eV}$ (C=C결합) 근처의 C1s-peak가 주를 이루고,  $289.42 \text{ eV}$  근처(O=C=OH 결합)에서 약한 신호가 보이는데, 이는 전사공정에서 사용된 미량의 PMMA 잔류물로 추정된다. 도핑된 그래핀(빨간 실선 그래프)의 경우도 역시  $284.95 \text{ eV}$ (C=C결합) 근처의 C1s-peak가 주를 이루고, 아울러  $285.5 \text{ eV}$ (C-N결합)와  $287.17 \text{ eV}$ (C-N결합)에 해당하는 sub-peak들이 추가적으로 생기면서 상대적으로 C1s-peak이 비대칭적으로 폭이 넓어지는 양상을 보였다. 역시나 전사공정에서 사용된 PMMA 잔류물로 추정되는  $289.42 \text{ eV}$  근처(O=C=OH 결합)에서 신호가 보였다. 한편, 질소원자 결합성분을 직접적으로 보여주는 Fig. 4(c)의 N1s-peak 관련 그래프에서 보여지는 바와 같이, 메탄가스로부터 합성된 순수 그래핀(검은 실선 그래프)에서는 질소원자관련 신호가 나타나지 않았고, 피리딘을 소스로 합성된 질소 도핑된 그래핀(빨간 실선 그래프)의 경우에는  $400.4 \text{ eV}$  근처의 Pyrrolic-N 신호와  $402 \text{ eV}$  근처의 Graphitic-N 신호가 중첩된 N1s-peak이 보였다.



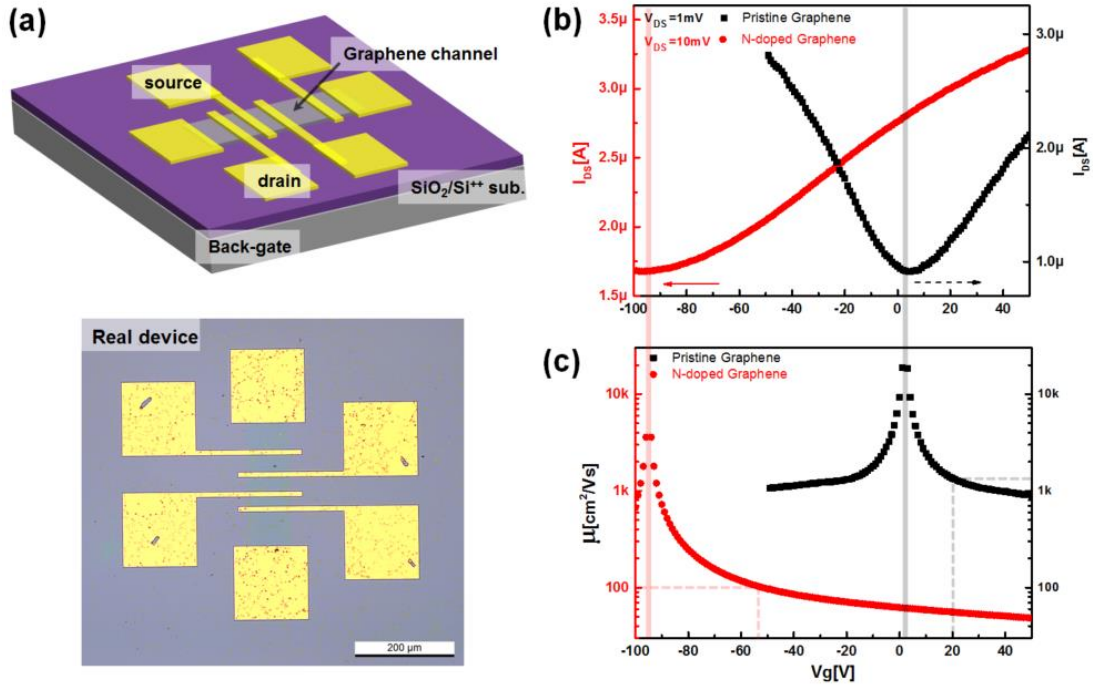


Fig. 5. 합성된 순수 그래핀 및 질소 도핑된 그래핀의 전기물성 평가. (a) 각각의 그래핀 시료를 채널로 제작된 전계효과 트랜지스터의 개략도(위)와 실제 제작된 그래핀 트랜지스터 사진(아래). (b) 제작된 소자로부터 측정된 게이트 전압에 따른 순수 그래핀(검은선) 및 도핑된 그래핀(빨간선)의 전류변화 곡선. (c) (b)에서 측정된 전류-전압특성으로부터 평가된 순수 그래핀(검은선) 및 도핑된 그래핀(빨간선)의 전하이동도(mobility) 평가 그래프.

결과적으로 XPS 분석을 통해 피리딘을 소스로 합성된 그래핀의 경우 질소원자가 도핑된 양상을 직접적으로 확인하였다. 질소가 탄소와 치환되어 도핑이 된다고 하더라도 질소와 탄소와의 결합양상에 따라서 도핑된 그래핀의 물성이 판이하게 달라질 수 있다는 선행된 연구결과가 있다. 예컨대, Pyrrolic-N (5각형+vancancy 구조 ; 4C+1N+결합) 또는 Pyridinic-N (6각형+vancancy 구조 ; 5C+1N+결합) 형태로 치환 도핑된 그래핀은 p-type 물성으로 보일 수 있고, Graphitic-N (6각형 구조 ; 5C+1N) 형태로 치환도핑이 된 그래핀은 n-type 물성을 보이게 된다 [10]. 본 XPS 결과는 다음에서 계속된 전기물성 측정 결과와도 일맥상통한다.

마지막으로 앞에서 분석한 각각의 그래핀 시료에 대한 광학적 물성 평가에 뒤이어, 전기적인 물성 평가를 수행하였다.

Fig. 5(a)와 같이 메탄가스로부터 합성된 순수그래핀과 피리딘을 소스로 합성된 질소 도핑된 그래핀 각각의 시료를 채널로 하여, 전형적인 반도체 소자 제작 공정인 전자빔 리소그래피(e-beam lithography)와 선택적 플라즈마 식각 방법을 활용하여 기초적인 그래핀 전계효과 트랜지스터들(Graphene Field Effect Transistors ; G-FETs)을 제작하였다. 제작하고 측정된 소자의 그래핀(Single layer graphene; SLG) 채널의 폭은 80 μm, 길이는 20 μm였고, 금속전극은 열증착기(thermal evaporator)를 사용하여 Cr 0.5 nm, Au 50 nm를 증착하여 형성시켰다. 소자의 전기물성 평가는 약 5.0×10<sup>-6</sup> Torr의 진공중에서 수행되었다. Keithley 236 Source measure unit 측정장비를 활용하여 백게이트(back-gate) 전압(V<sub>GS</sub>)에 따른 소스-드레인 전류값

(I<sub>DS</sub>)의 변화를 측정하였다. 측정된 결과는 Fig. 5(b)와 같이 나타났다. 그래프에서 보여지는 바와 같이 메탄 가스를 소스로 합성된 순수그래핀의 경우 전하중성점(Dirac point)이 약 +4 V에서 나타났고, 피리딘을 소스로 합성된 도핑된 그래핀의 경우 전하중성점이 약 -96 V정도에서 나타났다. 즉, 메탄가스를 소스로 합성된 그래핀의 경우 약간의 p-type를 보이긴 하지만 거의 중성의 특성으로 보이고, 피리딘을 소스로 합성된 그래핀의 경우 완전히 n-type 특성임을 보여주고 있다. 측정된 데이터 (b)로부터 각 시료에 대한 전하이동도(mobility)를 식 (1)을 활용하여 Fig. 5(c)와 같이 평가해보았다.

$$\mu = \frac{1}{n \cdot e \cdot \rho} = \frac{1}{|V_G - V_D| C_a \cdot e \cdot \left( R \cdot \frac{A}{L} \right)} \quad (1)$$

[μ 전하이동도, n 전하밀도, e 기본 전하량, ρ 비저항, V<sub>G</sub> 게이트전압, V<sub>D</sub> 디락 전압, C<sub>a</sub> 게이트 절연체 전기용량, R 채널저항, A 채널단면적, L 채널길이]

순수그래핀의 경우 게이트 전압이 +20 V인가되었을 때 전자의 이동도가 약 1050 cm<sup>2</sup>/V·s 정도로 평가되었고, 도핑된 그래핀의 경우 게이트 전압이 -55 V 인가되었을 때 전자의 이동도가 약 100 cm<sup>2</sup>/V·s 정도로 평가되었다. 특히, 피리딘을 사용하여 질소-도핑된 그래핀의 물성평가 관련 2011년 선행된 연구결과[8]와 비교했을 때, 선행된 연구에서는 합성시간 10분, 전하중성점 V<sub>Dirac</sub> = ~ -10 V,

전하이동도  $\mu_e = \sim 5 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  정도로 본 연구를 통해 얻은 결과(합성시간 1분, 전하중성점  $V_{Dirac} = \sim -96 \text{ V}$ , 전하이동도  $\mu_e = \sim 100 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ )가 현저히 좋음을 알 수 있었다. 이는 선행된 연구결과에 비해 본 연구수행을 통해 얻은 질소 도핑된 그래핀의 시료가 XPS의 N1s-peak 분석결과에서 402 eV 근처의 Graphitic-N 신호가 주가 되어 나타났기 때문이다.

#### IV. 결론

결과적으로, 우리는 화학기상증착(Cheical Vapor Deposition: CVD)법을 활용하여 소스, 압력, 시간 등의 다양한 합성 변수들을 조절함으로써 그래핀의 광·전기적 물성을 성공적으로 제어하였다. 본 연구에서 얻어진 결론을 요약하면 아래와 같다.

- ◆ 순수 및 질소도핑된 그래핀 합성
  1. 메탄가스를 탄소원으로 순수 그래핀 합성
  2. 액상의 피리딘을 원료로 사용하여 질소-도핑된 그래핀 합성
- ◆ 합성된 그래핀의 광학적 전기적 물성 평가 비교
  - ✓ 기초광물성 평가
    3. 라만 분광법  
순수 그래핀: G-peak과 2D-peak가 선명히 보임  
질소-도핑된 그래핀: 스펙트럼에서는 D-peak, G-peak 그리고 다소 약해진 2D-peak 등이 보임.
    4. X선 광전자 분광법(XPS)  
순수 그래핀: C1s-peak가 선명  
질소-도핑된 그래핀: C1s-peak은 물론 N1s-peak도 나타났으며, C-N 결합 양상 확인
  - ✓ 기초 전기 물성 평가
    5. 게이트 전압에 따른 그래핀 채널의 전류-전압 평가  
순수 그래핀: 전하중성점 :  $V_{Dirac} = +4 \text{ V}$  (약한 p-type), 전하이동도:  $\mu_e = 1050 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  ( $@V_G = +20 \text{ V}$ )  
질소-도핑된 그래핀: 전하중성점 :  $V_{Dirac} = -96 \text{ V}$  (강한 n-type), 전하이동도:  $\mu_e = \sim 100 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$  ( $@V_G = -55 \text{ V}$ )

본 연구 수행을 통해 얻어진 연구 노하우들은 그래핀을 기반으로 하는 광소자 및 전자소자의 응용에서 선행적으로 갖춰줘야 할 기초물성을 제어하는 아주 중요한 기술로써, 향후 고효율 소자를 위한 채널 및 전극소재의 밴드구조(band structure)와 일함수(work function) 등

을 디자인하는데 크게 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

#### ACKNOWLEDGEMENT

이 논문은 한국전력공사의 재원으로 기초전력연구원의 2014년 선정 기초연구개발과제(No. R14XA02-20)의 지원 및 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업(No. 2014R1A1A1006414)의 지원을 받아 수행되었다.

This research was supported by Korea Electric Power Corporation (KEPCO) through Korea Electrical Engineering & Science Research Institute.(grant number : R14XA02-20). K. S. Kim acknowledges the Basic Science Research Program through the National Research Foundation of Korea(NRF ; grant number: 2014R1A1A1006414) funded by the Ministry of Science, ICT and Future Planning.

#### REFERENCES

- [1] K. S. Novoselov et al, "Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Film", Science, 306 pp 666-669, (2004)
- [2] A. Reina et al, "Large area, few-layer graphene films on arbitrary substrates by chemical vapor deposition", Nano Letters, 9, pp 30-35, (2009)
- [3] K. S. Kim et al, "Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes", Nature, 457, pp 706-710, (2009)
- [4] X. Li et al, "Large-Area Synthesis of High-Quality and Uniform Graphene Films on Copper Foils", Science, 324, pp 1312-1314, (2009)
- [5] S. Bae et al, "Roll-to-roll production of 30-inch graphene films for transparent electrodes", Nature Nanotechnology, 5, pp 574-578, (2010)
- [6] A. Reina et al, "Transferring and Identification of Single- and Few-Layer Graphene on Arbitrary Substrates", J. Phys. Chem. C, 112, pp 17741-17744, (2008)
- [7] D. C. Wei et al, "Synthesis of N-doped Graphene by Chemical Vapor Deposition and Its Electrical Properties" Nano Letters, 9, pp 1752-1758 (2009)
- [8] Z. Jin et al, "Large-Scale Growth and Characterizations of Nitrogen-Doped Monolayer Graphene Sheets" ACS Nano, 5, pp 4112-4117 (2011)
- [9] A. Das et al, "Monitoring dopants by Raman scattering in an electrochemically top-gated graphene transistor", Nature Nanotechnology, 3, pp 210-215, (2008)
- [10] T. Schiros et al, "Connecting Dopant Bond Type with Electronic Structure in N-Doped Graphene" Nano Letters, 12, pp 4025-4031 (2012)