

유전영동 현상을 이용한 그래핀 면저항의 선택적 향상 연구

오수연 · 김지현[†]

고려대학교 화공생명공학과
02841 서울특별시 성북구 안암로 145
(2016년 9월 10일 접수, 2016년 12월 23일 수정본 접수, 2016년 12월 27일 채택)

Selective Enhancement of the Sheet Resistance of Graphene Using Dielectrophoresis

Sooyeoun Oh and Jihyun Kim[†]

Department of chemical and biological engineering, Korea University, 145, Anam-ro, Seongbuk-gu, Seoul, 02841, Korea
(Received 10 September 2016; Received in revised form 23 December 2016; accepted 27 December 2016)

요 약

그래핀은 sp^2 결합으로 이루어진 한 겹의 탄소 물질이며, 그래핀 본래의 우수한 물성으로 인해 다양한 분야에서 활용되고 있다. 그래핀의 높은 전기전도도와 전하이동도로 인해서 (광)전자 소자 물질로 주목받고 있다. 화학적 도핑 과정을 통해 n 형과 p 형의 그래핀이 형성 가능하며 이를 이용하여 다양한 구조의 소자 형성이 가능하게 되었다. 본 연구에서 그래핀의 도핑 효과를 선택적으로 증대시키기 위해 유전영동 현상을 도입하였다. 주파수 10 kHz, 5 V_{pp} (peak-to-peak voltage) 조건에서 유전 영동 현상을 이용하였을 때 금나노입자들이 전극 위치 주변으로 집중됨을 확인하였다. 그래핀의 도핑 효과를 라만 분광법과 전기적 물성 변화를 통하여 조사하였으며, 그래핀에 AuCl₃ 용액을 이용한 유전 영동 현상을 통하여, 그래핀 기반 소자의 국소적인 부분에 선택적으로 화학적 도핑이 가능함을 확인하였다. 이러한 연구는 그래핀 기반 소자와 interconnection 등에 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Abstract – Graphene is a monolayer carbon material which consists of sp^2 bonding between carbon atoms. Its excellent intrinsic properties allow graphene to be used in various research fields. Many researchers believe that graphene is suitable for electronic device materials due to its high electrical conductivity and carrier mobility. Through chemical doping, n- or p-type graphene can be obtained, and consequently graphene-based devices which have more comparable structure to common semiconductor-based devices can be fabricated. In our research, we introduced the dielectrophoresis process to the chemical doping step in order to improve the effect of chemical doping of graphene selectively. Under 10 kHz and 5 V_{pp} (peak-to-peak voltage), doping was conducted and the Au nanoparticles were effectively formed, as well as aligned along the edges of graphene. Effects of the selective chemical doping on graphene were investigated through Raman spectroscopy and the change of its electrical properties were explored. We proposed the method to enhance the doping effect in local region of a graphene layer.

Key words: graphene, sheet resistance, dielectrophoresis

1. 서 론

sp^2 결합으로 이루어진 한 겹의 탄소물질인 그래핀(graphene)은 높은 열전도도와 전기전도도, 우수한 광투과성, 빠른 전하이동도, 화학적 안정성, 유연성(Young's modulus ~1,060 GPa) 등 우수한 전기적/광학적/기계적 물성으로 인해 전자 소자 및 광학 소자, 센서 분야에 이르기까지 다양한 분야에 적용이 가능할 것으로 기대되고 있다[1-

5]. 따라서 많은 연구 그룹에서 고품질 그래핀의 성장 공정에서부터, 그래핀의 물성 분석, 그래핀을 활용한 소자 제작 및 안정성 조사까지 다양한 연구들을 보고하고 있다[1-8]. 그래핀의 우수한 특성들 중 특히 높은 전기전도도, 전하이동도, 광투과도로 인해 전자 재료 (electronic material) 와 광전자재료(optoelectronic material)로써 주목받고 있다. 그래핀이 CMOS (complementary metal-oxide semiconductor) 나 PN 다이오드 등 다양한 형태의 전자 소자로 활용되기 위해서는 밴드갭 형성(bandgap opening)과 n 형과 p 형 그래핀 형성이 요구된다. 한 겹의 그래핀은 밴드갭이 존재하지 않으나 그래핀 나노리본(nanoribbon) 이나 적층의 그래핀(stacked graphene) 구조에서 밴드갭 존재가 보고됨에 따라 그래핀 나노리본이나 적층 구조의 그래핀을 사용한 소자 형성을 통하여, 한계점으로 지적되던 밴드갭 부재에

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: hyunhyun7@korea.ac.kr

‡이 논문은 고려대학교 김성현 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

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.

대한 문제 해결이 가능하게 되었다[9,10]. 도핑 과정을 통하여서 n 형과 p 형의 그래핀 형성이 가능하며, 그 방법으로는 그래핀 성장 과정 중 도펀트(dopant) 물질을 첨가하여 탄소의 위치에 도펀트 원소로 대체하여 n 형 또는 p 형 그래핀을 성장시키는 치환형 도핑 방법과(substitutional doping), 성장 후 화학적 처리법(chemical modification) 등이 알려져 있다[11,12]. 치환형 도핑 방법에서는 주로 붕소와 질소가 각각 p 형과 n 형 도펀트로 사용되는데, 탄소 이외의 타원자를 주입하기 때문에 그래핀 내부의 strain을 발생시키고 이는 그래핀의 결합을 발생시키는 요인으로 작용한다[11]. 이러한 문제점을 극복하기 위해서 그래핀 내부의 결합 없이 그래핀의 전기적 특성을 변화시킬 수 있는 화학 처리 방법들이 보고되고 있으며, p 형 도펀트(electron-withdrawing group) 로 AuCl_3 , NO_2 이 사용되며, n 형 도펀트(electron-donating group) 로는 NH_3 가 알려져 있다[12].

기존 반도체 물질의 경우, 이온 주입(ion implantation) 과정을 통해서 소자 설계에 따라 특정 위치에 도핑층 형성이 가능하며, 각 위치에 따라 도핑 농도의 변화를 주는 것도 가능하다. 따라서 기존의 반도체 소자는 복잡하지만 최적화된 소자 설계와 이에 따른 소자 공정이 가능하지만, 그래핀은 두께가 매우 얇기 때문에 이온 주입 공정의 적용이 제한된다. 또한, 이온 주입 공정은 기계적인 운동에너지를 이용하여 특정 이온을 주입하는 방식으로, 필연적으로 많은 양의 결합이 생성되고, 이를 해결하기 위하여 고온 열처리 공정이 필수적이다. 확산(diffusion)에 의한 도핑의 경우에도, 그래핀의 매우 얇은 막두께와 높은 온도조건 때문에 공정을 제어하기가 매우 어렵다. 따라서, 결합의 생성을 최소화하면서 초박막 그래핀의 전도도(혹은 도핑농도)와 전하타입(p-type 혹은 n-type)을 위치에 따라 제어하기 위해서는 이온 주입과 확산법이 아닌 새로운 방법이 요구되고, 이는 그래핀 기반의 multi-functional 소자 구현에 필수적인 기술로 요구되고 있다.

따라서 본 연구에서는 유전영동(dielectrophoresis, DEP) 현상을 도입하여 그래핀의 특정 위치에 선택적 도핑 방안을 제시하였다. 유전영동 현상은 1951년 Herbert Pohl 에 의해서 처음으로 언급되었으며, 최근 이 현상을 이용하여 물질의 분리, 이동, 정렬 등에 이용되고 있다[13]. DEP는 유전물 또는 작은 크기의 전도체가 불균일한 전기장에 존재할 때, 물질 내부에 부분적으로 쌍극성이 유도되며 전기장 구배에 따라 입자의 이동이 발생하는 현상이다[14]. 이 현상은 물질 내에 결합을 형성하지 않은 비과피적 방법이며 높은 재현성, 현재 사용되는 반도체 양산 장비와의 높은 상호성 등의 장점으로 인해, 나노선(nanowire), 나노입자(nanoparticle, NP) 같은 나노물질과 세포, 그래핀, 탄소나노튜브의 분리나 배열 등에 활용되고 있다[15-19]. 탄소나노튜브의 경우 반도체 탄소나노튜브와 금속나노튜브가 함께 성장되는데 그 활용 범위가 다르므로 각각을 분리하는 기술이 중요시된다. Krupk은 유전영동을 이용하여 반도체 탄소나노튜브로부터 금속나노튜브만을 분리하여 정렬 가능성을 보고하였다[17]. 또한 유전영동 현상을 이용하여 n 형 GaN 나노선을 p 형 Si 위에 정렬하여 PN 다이오드를 형성하고 그 특성을 분석하였고, 이 결과로부터 UV 나노 LED 와 같은 다양한 소자 형성 가능성까지 제시하였다[18]. 또한 Vijayraghavan은 유전영동을 이용하여 그래핀 분산 용액 속 그래핀을 정렬하여 전기적 특성과 광학 특성을 분석함으로써 소자 형성 시 필수적인 포토리소그래피(photolithography)나 식각 공정 없이 그래핀 기반의 소자 형성이 가능함을 보여주었다[19].

본 연구에서는 DEP를 도입하여 동일 그래핀 시편 내의 특정 위치에

선택적으로 도핑 효과를 향상시켰으며, 라만 분광법과 그래핀의 전기적 물성 변화를 통해 그 효과를 조사해 보고자 하였다. 본 연구는 그래핀의 선택적/지역적 도핑을 이용한 PN 구조 및 interconnection 형성에 도움이 될 것으로 예상된다.

2. 실험

사용한 시편은 SiO_2 (300 nm)/Si (525 μm) 기판을 사용하였으며, 면저항(R_{sh}) 측정을 위해 포토리소그래피 과정을 통하여 CTLM (circular transmission line method) 패턴을 형성하였다. 전극은 Ti/Au (20/80 nm)을 전자빔 증착법(electron beam evaporation)을 통해 형성하였다. 다음으로 그래핀은 구리 기판 위 화학적 기상 증착 방식(chemical vapor deposition)으로 성장된 상용 그래핀을 구입(GRAPHENE SQUARE)하여 사용하였다. 고분자 지지층을 이용하는 습식 전사 방식으로 $1 \times 1 \text{ cm}^2$ 크기의 그래핀을 전극이 형성된 기판 위에 전사하였다. 그래핀 전사의 상세한 과정은 다음과 같다. 한 겹의 그래핀을 사용하기 위해서 구리 기판 양면에 성장된 그래핀의 한 면을 polymethyl methacrylate (PMMA)로 spin-coating 후 나머지 한 면을 100 W, 20 SCCM, 20초 동안 산소 플라즈마(RIE 5000, SNTK)를 이용하여 제거해 주었다. 1 wt% ammonium persulfate 용액에 6 시간 이상 넣어 구리 기판을 녹여 준 다음, PMMA/그래핀을 기판 위에 전사하였다. Acetone에 1시간 동안 담가 지지층인 PMMA 제거하고 탈이온수(deionized water, DI)를 이용하여 잔류 용액을 세척하였다. 남아있는 DI 제거와 그래핀과 기판과의 접촉을 향상을 위해 75 °C에서 열처리해 주었다. Au NP의 정렬을 통한 유전영동의 영향을 관찰하기 위하여 CTLM 전극 주변을 probe tip을 이용하여 isolation 후 실험을 수행하였다. AuCl_3 분말(Sigma-Aldrich)을 nitromethane에 용해시켜 농도 20 mM의 용액을 제조하였으며, 일정한 사이즈의 Au NP를 얻기 위해서 200 nm의 polytetrafluorethylene 필터에 거른 후 본 실험에 사용하였다. 도핑 과정은 다음과 같이 진행하였다. 도핑 용액을 그래핀이 전사된 기판 위에 떨어뜨리고 특정 전극에 function generator (Agilent 33250A)를 이용하여 5 V_{pp} (peak-to-peak voltage)의 사인파형의 전압을 주파수 10 kHz로 60 초 동안 가해 준다. DI를 이용하여 남아있는 용액을 제거한 다음 질소로 남아있는 물기 또한 제거해 준다. 도핑으로 인한 그래핀의 특성 변화를 알아보기 위하여 마이크로 라만 분광법을 이용하였다. 532 nm 파장의 diode-pumped solid-state (DPSS, Omicron) 레이저를 back-scattering geometry에서 현미경을 통하여 조사(빔 크기는 약 3 μm) 하고, 산란된 빔을 spectrometer (MonoRa500i, DONGWOO OPTRON)를 이용하여 수집하여 측정하였다. 도핑처리를 한 그래핀의 전기적 특성은 probe-station에 연결된 Semiconductor parameter analyzer (4155C, Agilent)를 이용하여 측정하였다. 그래핀의 R_{sh} 은 CTLM 패턴을 통해 얻어진 전류-전압 특성을 이용하여 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

아래의 식은 유전영동의 힘을 나타내는 식이다[15].

$$\vec{F}_{DEP} = A \cdot \epsilon_m \cdot K(\omega) \cdot \vec{\nabla}(E_{rms}^2) \quad (1)$$

$$K(\omega) \equiv \text{Re} \left(\frac{\epsilon_n^* - \epsilon_m^*}{\epsilon_m^*} \right) \quad (2)$$

여기서 A 는 물체의 형태에 따른 상수이며, ϵ_m^* 은 매질의 유전율, ϵ_n^* 은 입자의 유전율, $K(\omega)$ 은 Clausius-Mossotti factor의 실수부, E_{rms} 는 전기장의 크기를 의미한다. 위 식으로부터 유전 영동 힘은 인가된 전기장의 주파수와 세기, 전기장 속에 놓여진 물질의 전도도 및 유전율과 같은 유전 특성에 따라 달라지게 된다[14]. $K(\omega) > 0$ 경우, 입자의 이동이 전기장 구배가 큰 쪽으로 이동하며 이를 양 유전 영동(positive dielectrophoresis, p-DEP)이라 하며, 이때 불균일한 전기장 속에 놓여진 물질이 전극 쪽으로 당겨진다. $K(\omega) < 0$ 경우, 전기장 구배가 작은 쪽으로 움직이며 음 유전영동(negative dielectrophoresis, n-DEP)이라 하며, 이 경우 전기장에 놓여진 물질을 전극으로부터 밀어낸다. 금속성 나노 물질의 경우 p-DEP를 이용하여 강한 전위(electric potential)가 형성된 전극 끝 부분으로 금속 나노 물질이 정렬됨을 여러 논문에서 보고 하였다[14]. Au NPs의 경우, 10^{18} Hz 이하의 주파수 범위에서 $K(\omega)$ 의 수치가 일반적으로 양의 값을 가지며 따라서 이 범위에서 실험을 진행 하였을 때, p-DEP로 인해 용액 속 Au NPs는 전기장 구배가 큰 전극 주변으로 집중됨이 실험적으로 확인되었다[20]. 또한 Ag 나노선의 경우도 p-DEP를 이용하여 선택영역에 효과적으로 정렬되었다[21]. 따라서 본 연구에서는 Au NPs를 DEP 현상을 이용하여 전극 주위로 집중시킴으로써 동일한 그래핀 층 내의 특정 위치에서 도핑 효과를 증대시키고자 하였고, 이를 통해 동일 기관 내에서 R_{sh} 의 변화를 유도하고자 하였다. 이러한 연구는 그래핀 소자의 integration에 도움을 줄 것으로 예상된다. Fig. 1은 그래핀이 전사된 전극의 DEP를 이용한 도핑 수행 전과 후의 광학이미지이다. 한 기관 위에 여러 개의 CTLM 패턴을 형성하여 DEP 힘을 가해준 부분과 가해지지 않은 부분을 동시에 도핑 과정을 수행함으로써 그 효과를 비교해 보고자 하였다. 그래핀의 도핑 효과를 비교하기 위해 그래핀의 크기를 동일하게 형성하였고 한 시편 내에서 DEP를 이용하여 도핑된 부분과 그렇지 않은 부분을 비교하였다. 정확한 비교를 위해 그래핀을 isolation 시켜서 비교하였다. DEP 기술을 이용한 도핑 수행 후 그래핀 가장 자리에 Au NPs가 집중되어 있음을 Fig. 1(d)을 통해 알 수 있다.

Fig. 2는 도핑 전후의 라만 스펙트럼이다. 라만 분광법은 그래핀의 접수 분석, 결함 분석, 도핑 효과 등 특성을 조사하기 위해 사용되는 효과적인 분석방법으로 사용된다. 그래핀에서 얻은 라만 스펙트럼은

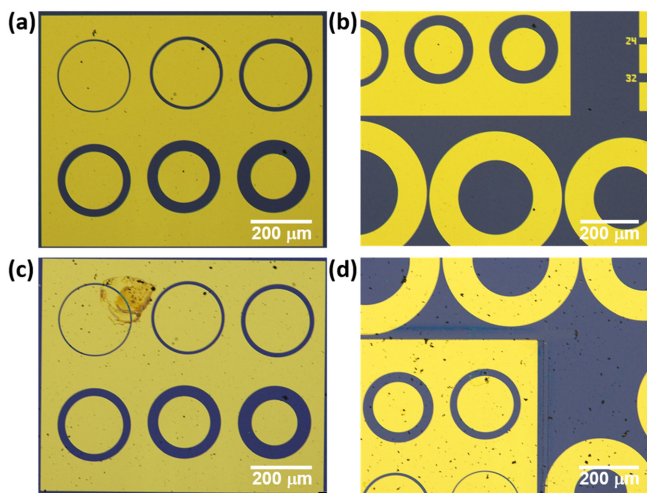


Fig. 1. Optical images of the fabricated specimens; (a) and (b) before doping and (c) and (d) after doping.

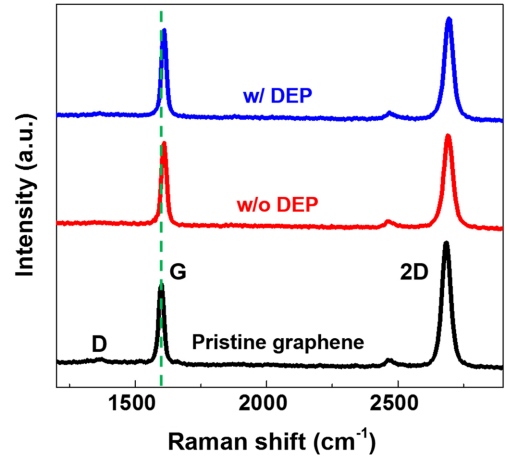


Fig. 2. Raman spectra of the graphene before and after doping.

D (~1350 cm⁻¹), G (~1590 cm⁻¹), 2D (~2700 cm⁻¹) 피크가 관찰됨으로 우수한 물성을 가진 그래핀임을 확인하였다. D 피크는 결함에 의해 발생되며 결함의 정도가 클수록 강하게 나타난다. 따라서 그래핀의 결함 정도를 분석하기 위해서는 G 피크의 강도 대비 D 피크의 강도(intensity ratio of D/G peaks, I_D/I_G)를 비교하며, 그 수치가 낮을수록 우수한 그래핀이라 평가할 수 있다. G 피크는 흑연 물질들에서 공통적으로 발견되며, 2D 피크의 경우 sp^2 결합으로 이루어진 탄소 물질 내에서 관찰된다. 특히, 2D 피크의 강도와 형태로부터 흑연과 그래핀을 구별하는 것이 가능하다[22,23]. 앞서 서론에서 언급한 것과 같이 Au 이온은 그래핀으로부터 전자를 받아 Au NP를 형성하고 그래핀은 전자를 잃음으로써 $AuCl_3$ 용액은 그래핀에 대해 p형 도펀트로 작용한다. p형 도핑 후 그래핀의 라만 스펙트럼은 전하 추출로 인해 phonon stiffening으로 인한 G 피크의 upshift가 관찰된다[24-26]. Fig. 3에서 DEP 힘이 가해진 부분과 가해지지 않은 부분의 그래핀의 라만 특성을 비교하였다. 두 경우 모두 G 피크는 9 cm^{-1} 만큼 upshift 되었으며, 이를 통해 $AuCl_3$ 가 효과적인 p형 도펀트로 작용함을 알 수 있었다. I_D/I_G 는 그래핀의 품질을 평가하기 위한 지표로 사용되며, 도핑 전 I_D/I_G 는 0.01 이하로 고품질의 그래핀을 사용함을 알 수 있으며, 도핑 후 그 수치가 증가하지 않음에 따라 $AuCl_3$ 도핑 과정에서 추가적인 결함이 발생되지 않음을 알 수 있다. 따라서,

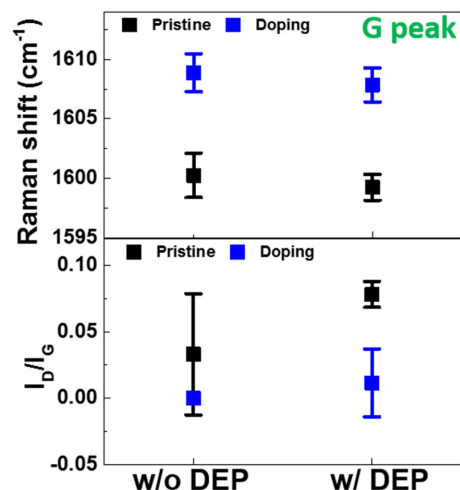


Fig. 3. Changes of G peak and I_D/I_G obtained from graphene doped w/ and w/o DEP, respectively.

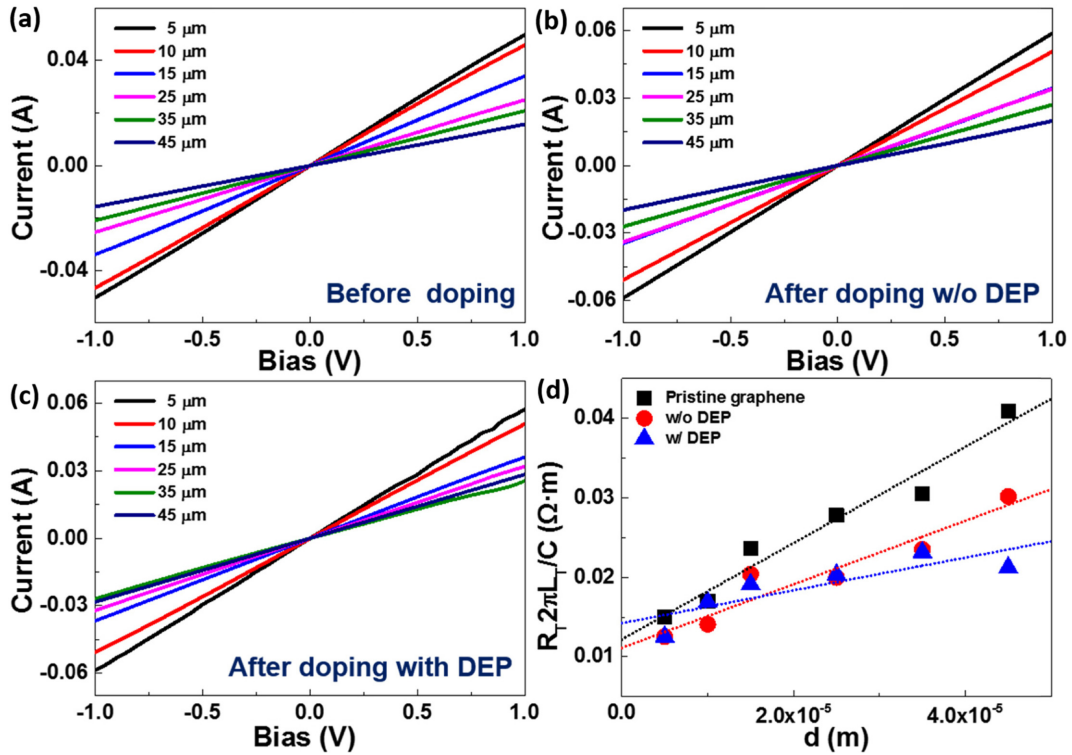


Fig. 4. Current-voltage characteristics (a) before doping, (b) after doping w/o DEP, (c) after doping w/ DEP, and (d) $R_T \cdot 2\pi L / C$ as a function of distance.

DEP 를 이용한 화학적 도핑법은 이온주입이나 확산도핑법에 비해 그래핀에 적용하기에 유리하다고 할 수 있다.

Fig. 4는 그래핀 도핑 전후의 전기적 특성을 나타내고 있다. 직선 형태의 TLM 구조를 사용하여 물질의 R_{sh} 과 접촉저항을 구할 경우 추가 isolation 과정이 필요하다. CTLM 구조는 이 문제점을 극복한 구조이며, 전류가 중앙의 전극으로부터 주변 전극으로 흐르기 때문에 추가 isolation 과정이 필요하지 않다는 장점을 가진다[27]. 본 실험에서는 다양한 간격의 전극을 사용함으로써 전극 사이 간격에 따른 특성을 관찰하였으며, $AuCl_3$ 도핑 후 전류의 양이 증가됨에 따라 전체 저항이 감소됨을 알 수 있다. 또한 전기적 특성을 통해 구해진 값들과 아래의 식을 이용하여 $AuCl_3$ 도핑 후 R_{sh} 변화를 조사하였다.

$$R_T = \frac{R_{sh}}{2\pi L} (d + 2L_T) C \quad (3)$$

$$C = \frac{L}{d} \ln\left(1 + \frac{d}{L}\right) \quad (4)$$

여기서 R_T 는 측정된 전체 저항, L 은 안쪽 전극의 반지름, d 는 전극 사이의 간격, L_T 는 transfer length, C 는 correction factor 이다. 전극 사이의 간격은 5, 10, 15, 25, 35, 45 μm 이며, 전체 저항과 전극 사이의 간격들과의 관계를 나타내는 위 식으로부터 그래핀의 R_{sh} 수치를 추출하였다. 그래핀의 R_{sh} 변화는 DEP 공정을 도입하였을 경우 $793.8 \Omega/\square$ 감소하였고, 동일 시편 내에서 전기장을 가하지 않은 부분의 그래핀 R_{sh} 은 $779.5 \Omega/\square$ 감소하였다. 동일한 도핑 과정 중 DEP 힘이 가해진 부분과 그렇지 않은 부분의 그래핀 R_{sh} 을 얻었으며, DEP 공정을 도입할 경우 그래핀의 R_{sh} 변화 정도가 더 크게 감소됨을 Fig. 5를 통해 알 수 있다. 위 결과들로부터 본 연구는 DEP 현상을 도핑과정에 도입하여 동일 시료 내에서 원하는 위치에서의 도핑 효

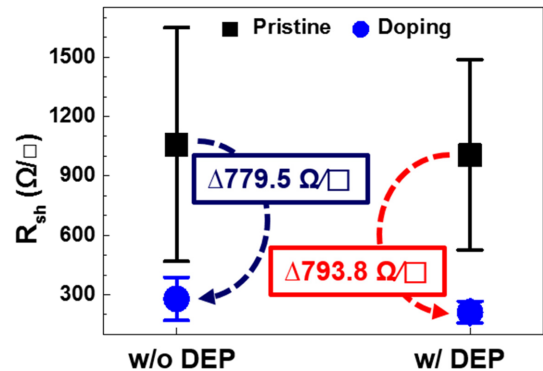


Fig. 5. Sheet resistances of graphene after doping w/ and w/o DEP.

과를 선택적으로 향상시킬 수 있음을 보였다. 본 연구의 결과는 $AuCl_3$ 용액에 한정된 것이 아니라 그래핀의 화학적 도핑에 사용되는 다양한 도펀트 물질에도 적용 가능하므로 앞으로의 응용 가능성이 매우 높다. 본 연구로부터 제안된 방법을 통해 각 물질에 따른 공정 조건을 확립함으로써 고품질의 p 형 또는 n 형 그래핀 형성이 가능할 것으로 생각된다. 그래핀의 응용분야로 기대되고 있는 multi-functional 소자와 interconnection 에서도 적용 가능할 것으로 예상된다. 최종적으로는 기존의 반도체 물질 기반의 소자와 상응하는 복잡하고 세밀한 구조를 가진 다양한 구조의 그래핀 기반 소자 구현이 기대된다.

4. 결 론

유전영동 현상을 도입하여 동일한 그래핀층 내의 원하는 위치에서 선택적 도핑이 가능함을 보여주었다. $AuCl_3$ 용액은 효과적인 p 형

도펀트로 작용하였으며, 도핑 전후 그래핀으로부터 얻은 라만 스펙트럼의 피크 이동을 통해 이를 검증하였다. 도핑 과정 중 유전영동 현상을 도입하지 않은 영역에 비해 유전영동 현상을 이용한 국부 영역의 경우, 그래핀의 R_{sh} 감소 효과가 증대됨을 확인하였다. 이러한 선택적 도핑 방법은 결함생성을 최소화 할 수 있기 때문에, 그래핀 기반의 전자소자 제작에 있어 다양하게 응용될 것으로 기대된다.

감 사

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행하였습니다 (No. 20163010012140).

References

- Bae, S., Kim, H., Lee, Y., Xu, X., Park, J.-S., Zheng, Y., Balakrishnan, J., Lei, T., Kim, H. R., Song, Y. I., Kim, Y.-J., Kim, K. S., Özyilmaz, B., Ahn, J.-H., Hong, B. H. and Iijima, S., "Roll-to-roll Production of 30-inch Graphene Films for Transparent Electrodes," *Nat. Nanotechnol.*, **5**, 574(2010).
- Bonaccorso, F., Sun, Z., Hasan, T. and Ferrari, A. C., "Graphene Photonics and Optoelectronics," *Nat. Photon.*, **4**, 611(2010).
- Mattevi, C., Kim, H. and Chhowalla, M., "A Review of Chemical Vapour Deposition of Graphene on Copper," *J. Mater. Chem.*, **21**, 3324(2011).
- Bae, S., Kim, S. J., Shin, D., Ahn, J.-H. and Hong, B. H., "Towards Industrial Applications of Graphene Electrodes," *Phys. Scr.*, **T146**, 014024(2012).
- Schedin, F., Geim, A. K., Morozov, S. V., Hill, E. W., Blanke, P., Katsnelson, M. I. and Novoselov, K. S., "Detection of Individual Gas Molecules Adsorbed on Graphene," *Nat. Mater.*, **6**, 652(2007).
- Schwierz, F., "Graphene Transistors," *Nat. Nanotechnol.*, **5**, 487(2010).
- Liu, X., Zhang, X. W., Meng, J. H., Yin, Z. G., Zhang, L. Q., Wang, H. L. and Wu, J. L., "High Efficiency Schottky Junction Solar Cells by co-doping of Graphene With Gold Nanoparticles and Nitric Acid," *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 233901(2015).
- Miao, X., Tongay, S., Petterson, M. K., Berke, K., Rinzler, A. G., Appleton, B. R. and Hebard, A. F., "High Efficiency Graphene Solar Cells by Chemical Doping," *Nano Lett.*, **12**, 2745(2012).
- Choi, B. G., Huh, Y. S., Hong, W. H., "Electrochemical Characterization of Porous Graphene Film for Supercapacitor Electrode," *Korean Chem. Eng. Res.*, **50**(4), 754-757 (2012).
- Han, M. Y., Özyilmaz, B., Zhang, Y. and Kim, P., "Energy Band-Gap Engineering of Graphene Nanoribbons," *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 206805(2007).
- Zhou, S. Y., Gweon, G.-H., Fedorov, A. V., First, P. N., Heer, W. A. D., Lee, D.-H., Guinea, F., Neto, A. H. C. and Lanzara, A., "Substrate-induced Bandgap Opening in Epitaxial Graphene," *Nat. Mater.*, **6**, 770(2007).
- Guo, B., Fang, L., Zhang, B. and Gong, J. R., "Graphene Doping: A Review," *Insciencas J.*, **1**, 80(2011).
- Fowler, J. D., Allen, M. J., Tung, V. C., Yang, Y., Kaner, R. B. and Weiller, B. H., "Practical Chemical Sensors from Chemically Derived Graphene," *ACS nano*, **3**, 301(2009).
- Pohl, H. A., "The Motion and Precipitation of Suspensoids in Divergent Electric Fields," *J. Appl. Phys.*, **22**, 869(1951).
- Jones, T. B., *Electromechanics of Particles*, Cambridge University Press, New York, NY(1995).
- Velev, O. D., Gangwal, S. and Petsev, D. N., "Particle-localized AC and DC Manipulation and Electrikinetics," *Annu. Rep. Prog. Chem., Sect. C*, **105**, 213(2009).
- Lee, G., Oh, S., Kim, B.-J. and Kim, J., "Improvement of Conductivity in Graphene by Ag Nanowires under a Non-Uniform Electric Field," *ECS Solid State Letters*, **3**, M41(2014).
- Krupke, R., Hennrich, F., Löhneysen, H. V. and Kappes, M. M., "Separation of Metallic from Semiconducting Single-Walled Carbon Nanotubes," *Science*, **301**, 344(2003).
- Kim, T. H., Lee, S. Y., Cho, N. K., Seong, H. K., Choi, H. J., Jung, S. W. and Lee, S. K., "Dielectrophoretic Alignment of Gallium Nitride Nanowires (GaN NWS) for Use in Device Applications," *Nanotechnology*, **17**, 3394(2006).
- Vijayaraghavan, A., Sciascia, C., Dehm, S., Lombardo, A., Bonetti, A., Ferrari, A. C. and Krupke, R., "Dielectrophoretic Assembly of High-Density Arrays of Individual Graphene Devices for Rapid Screening," *ACS Nano*, **3**, 1729(2009).
- Gierhart, B. C., Howitt, D. G., Chen, S. J., Smith, R. L. and Collins, S. D., "Frequency Dependence of Gold Nanoparticle Superassembly by Dielectrophoresis," *Langmuir*, **23**, 12450(2007).
- Papadakis, S. J., Gu, Z. and Gracias, D. H., "Dielectrophoretic Assembly of Reversible and Irreversible Metal Nanowire Networks and Vertically Aligned Arrays," *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 233118(2006).
- Ferrari, A. C., Meyer, J. C., Scardaci, V., Casiraghi, C., Lazzeri, M., Mauri, F., Piscanec, S., Jiang, D., Novoselov, K. S., Roth, S. and Geim, A. K., "Raman Spectrum of Graphene and Graphene Layers," *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 187401(2006).
- Raza, H., *Graphene Nanoelectronics-Metrology, Synthesis, Properties and Applications*, Spinger, Iowa City, Iowa(2012).
- Güneş, F., Shin, H.-J., Biswas, C., Han, G. H., Kim, E. S., Chae, S. J., Choi, J.-Y. and Lee, Y. H., "Layer-by-Layer Doping of Few-Layer Graphene Film," *ACS nano*, **4**, 4595(2010).
- Kim, K. K., Reina, A., Shi, Y., Park, H., Li, L.-J., Lee, Y. H. and Kong, J., "Enhancing the Conductivity of Transparent Graphene Films Via Doping," *Nanotechnology*, **21**, 285205(2010).
- Kwon, K. C., Choi, K. S. and Kim, S. Y., "Increased Work Function in Few-Layer Graphene Sheets via Metal Chloride Doping," *Adv. Funct. Mater.*, **22**, 4724(2012).
- Schroder, D. K., *Semiconductor material and device characterization*, 3rd ed., Wiley Inter-Science, Hoboken, NJ(2006).