

## Compact Disc를 마스터 몰드로 사용하는 저비용의 OFET용 유기반도체 소프트 리소그래피

박세진<sup>1</sup> · 김혁진<sup>2</sup> · 안태규<sup>1†</sup>

<sup>1</sup>한국교통대학교 나노화학소재공학과

<sup>2</sup>한국교통대학교 화공생명공학과

(2022년 07월 05일 접수, 2022년 08월 09일 수정, 2022년 08월 11일 채택)

## Cost-Effective Soft Lithography of Organic Semiconductors in OFETs with Compact Discs as Master Molds

Sejin Park<sup>1</sup>, Hyukjin Kim<sup>2</sup>, Tae Kyu An<sup>1†</sup>

<sup>1</sup>Department of Polymer Science & Engineering, Korea National University of Transportation,  
50 Daehak-Ro, Chungju, 27469, Republic of Korea

<sup>2</sup>Department of Chemical and Biological Engineering, Korea National University of Transportation,  
50 Daehak-Ro, Chungju, 27469, Republic of Korea

(Received July 05, 2022, Revised August 09, 2022; Accepted August 11, 2022)

**요약:** Organic field-effect transistor가 실제 전자 장치에 쓰이기 위해서는 유기반도체 용액공정용 미세 패터닝 기술이 요구된다. 본 연구에서는 기존의 스핀 코팅 방법보다 미세 패턴을 형성할 수 있는 소프트 리소그래피 방법이 더 우수한 전기적 특성을 가질 수 있다는 것을 확인하기 위해 비교 분석하였다. Compact Disc 표면의 나노 패턴을 이용하여 유연한 마스터 몰드를 제작하였고, 650 nm 폭의 2,7-Dioctyl [1] benzothieno [3,2-b] [1] benzo thiophene (C<sub>8</sub>-BTBT) 나노 와이어를 얻었다. 그 결과 소프트 리소그래피 방법을 이용해 제작된 소자 이동도는 0.086 cm<sup>2</sup>/Vs이며, 스핀 코팅으로 만들어진 소자 이동도는 0.0036 cm<sup>2</sup>/Vs으로 소프트 리소그래피 방법으로 제작된 소자가 약 20배 이상 높은 이동도와 더 우수한 전기적 성능을 보였다.

**Abstract:** OFET have require fine patterning technology for organic semiconductor solution process to be used in actual electronics. In this study, we compared and analyzed the soft lithography method which can form fine patterns more than the conventional spin coating method in order to confirm that it can have better electrical characteristics. The soft lithography method produced a flexible master mold using nano patterns on compact disc surfaces and obtained a 650 nm wide 2,7-Dioctyl [1] benzothieno [3,2-b] [1] benzo thiophene (C<sub>8</sub>-BTBT) nanowires. As a result, the field-effect mobility of devices fabricated by the spin coating method was 0.0036 cm<sup>2</sup>/Vs and mobility of devices produced by soft lithography method was 0.086 cm<sup>2</sup>/Vs, which was about 20 times higher than spin-coated devices and has better electrical performance.

**Keywords:** Organic field-effect transistors, Soft lithography, Patterning, Nanowire, C<sub>8</sub>-BTBT

<sup>†</sup> Corresponding author: Tae Kyu An (taekyu1985@ut.ac.kr)

## 1. 서론

용액 공정을 기반으로 하는 유기 전계 효과 트랜지스터(organic field-effect transistor, OFET)는 유연성, 저비용, 대면적 가공성 때문에 미래의 전자 장치(예: 착용형 장치, 전자 종이 및 다양한 센서)에서 유망한 구성요소로 부상했다[1,2]. 최근에 새로운 반도체에서 분자 설계나 용액 처리 기술의 개발을 통하여 유기 전계 효과 트랜지스터의 전기적 성능이 상당히 향상되었다[3,4]. 비정질 실리콘이나 금속 산화물 소자와 비교할 때 높은 전계 효과 이동도(field-effect mobility,  $\mu_{FETs}$ )를 얻기 위해 공유 결합된 주사슬 사이에서 가까운 스택킹(stacking)을 유도할 수 있는 분자 구조나 관능기가 도입되었다. 또한, 결정 도메인을 동일한 방향으로 정렬시키면서 전계 효과 이동도를 높이기 위해 다양한 용액 처리 기술이 사용되었다[5].

OFET 성능이 발전하면서 OFET를 포함하는 전자 장치의 상용화가 가능해 보이나 실제 전자 장치에 쓰이기 위해서는 유기반도체 용액공정용 미세 패터닝(patterning) 기술이 요구된다. 왜냐하면 미세 패터닝을 통해 단위 소자의 누설 전류를 줄이는 것은 물론 통합 소자의 누화를 방지할 수 있기 때문이다[6]. 비록 포토 리소그래피(photo lithography) 기술이 기존 산업 분야에서 널리 사용되었지만 유기 물질을 손상시킬 수 있는 화학 에칭(etching)을 사용하기 때문에 화학적으로 안정하지 못한 유기 물질에 바로 적용하기 어렵다[7]. 또한, 포토 리소그래피 공정은 고비용, 복잡한 작업 공정을 거치기 때문에 공정 비용을 낮출 수 있는 직접적인 용액공정용 패터닝 시스템의 개발이 필수적이다. 이에 기존의 포토 리소그래피를 대체할 수 있는 기술로서 유연한 템플릿을 사용하는 소프트 리소그래피(soft lithography) 기술이 학계에 자주 보고된다[6,8,9].

이 기술로 패터닝을 할 때 상향식 방식과 하향식 방식이 이용될 수 있다[6,9]. 상향식 방식으로는 직접적으로 유기 패턴을 몰드로부터 바로 기판에 전사할 수 있다. 하향식 방식으로는 프리(pre) 코팅 된 필름에 템플릿을 활용해 모세관 힘, 열 확산, 용매화, 표면 에너지 차이 등의 방법으로 패터닝한다[8]. 이러한 몰드 기반 제조 기술은 마스터 몰드가 보존되는 한 유연한 템플릿을 반복적으로 복제할 수 있기 때문에 저비용, 대량 생산에 적합하다. 이전에 본 연구실과 포항공과대학교 박찬언 교수 연구팀이 공동 연구한 소프트 리소그래피를 이용한 미세 패터닝 기술은 모세관 힘을 이용한 6,13-bis-(triisopropylsilyl)ethynyl pentacene (TIPS-PEN) 반도체의 패터닝에 관한 연구였다[10]. 이전 연구에서는 유기반도체에 간단하고 효율적인 패터닝 시스템을 도입한 소프트 리소그래피를 달성하기 위해, compact

disc(CD)에 있는 나노 패턴을 마스터 몰드(master mold)로 활용해 리소그래피용 몰드를 제작했다. 이 몰드를 활용하여 유도된 일축의 TIPS-PEN 결정 성장은 높은 결정성과 균일한 배향을 나타냈고, 결과적으로 기판 상에 폭 680 nm의 TIPS-PEN 나노 와이어 패턴을 성장시켰다. 이 유기 전계 효과 트랜지스터는  $2.04 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 의 높은 이동도( $\mu_{FET}$ )를 나타냈다.

이 연구에서는 기존의 포토 리소그래피나 전자빔 리소그래피 기술과 달리 대량 생산 CD 또는 블루 레이 디스크(blue-ray discs)가 가진 고해상도 나노 패턴을 이용하므로 비교적 값이 싸고 간단하다는 장점을 가진다. CD 및 블루 레이 디스크는 데이터 저장에 사용되는 선형 미세 패턴 또는 나노 패턴을 표면에 가지고 있어 유기 재료를 인쇄하기 위한 마스터 몰드로 재사용될 수 있다. 즉, 저렴한 CD 또는 블루 레이 디스크가 갖고 있는 고해상도 나노 패턴을 사용하면 값 비싼 공정 절차를 사용하지 않고도 미세 나노 패턴 응용의 확장을 기대할 수 있다. 그 예로, 다른 연구에서 유기 태양 전지에서 quasi-랜덤(random) 나노 구조로 된 블루 레이 디스크에 의해 인쇄된 활성층이 평탄한 필름보다 더 많은 광자 수확을 산출하는 것으로 보고되었다[11].

이에 이번 연구에서는 기존에 연구하던 CD를 활용한 소프트 리소그래피 방법을 벤조티에노-벤조티오펜 유도체인 2,7-Dioctyl [1] benzothieno [3,2-b] [1] benzothiophene ( $C_8$ -BTBT) 반도체에 적용해 보았다. 나노 미세 패턴을 형성할 수 있는 소프트 리소그래피 방법이 더 우수한 전기적 특성을 가질 수 있다는 것을 확인하기 위해 기존의 대표적인 용액공정법인 스핀 코팅(spin coating) 방법과 비교 분석하였다. 기존의 연구에 따르면 벤조티에노-벤조티오펜 유도체중 하나인  $C_8$ -BTBT는 p형 반도체 물질로 코어(core)의 공액 길이가 짧고 리지드(rigid)하여, 자기조립 특성이 우수하다[12,13]. 이로써 높은 정공 이동도와 높은 공기 안정성을 가져 용액 공정이 가능한 OFET용 유기반도체 물질로서 조사되었다. 소프트 리소그래피 방법은 이전 연구와 동일하게 CD 표면의 나노 패턴을 이용하여 유연한 마스터 몰드를 제작하였고, 우리는 650 nm 폭의  $C_8$ -BTBT 나노 와이어를 얻었다. 편광 광학 현미경 및 X선 회절(X-ray diffraction, XRD) 측정을 통해 각  $C_8$ -BTBT 나노 와이어가 스핀 코팅 된 필름에 비해 높은 결정성과 균일성을 나타냈다. 이는 선형 템플릿을 따라 템플릿에 유도된  $C_8$ -BTBT가 결정 성장에 기여하였다. 스핀 코팅 방법으로 형성한  $C_8$ -BTBT OFET으로부터 추출한 이동도 값은  $0.0036 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이며, 소프트 리소그래피 방법으로 만든  $C_8$ -BTBT OFET의 이동도는  $0.086 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 로 약 20 배 이상 향상된 이동도를 나타냈다.

## 2. 실험

### 2.1. 재료 및 시약

본 연구에서는 로 사용된 Sulfuric acid (Aldrich), Hydrogen peroxide (TCI), Mesitylene (Aldrich), divinyltetramethyldisiloxane-bis(benzocyclobutene), (BCB, Dow Chemicals), chlorobenzene (TCI), UV-curable PUA precursor (MINS-311RM, MinutaTech.), polyethylene terephthalate (PET films, MinutaTech.), C<sub>8</sub>-BTBT (Aldrich) 제품을 구입하여 정제없이 사용하였다.

### 2.2. 몰드 제작

Polyurethane acrylate (PUA) template는 기존 문헌에 보고된 방식과 동일하게 제작하였다[14]. 시중에서 판매되는 CD를 구입하여 보호층으로 덮힌 폴리카보네이트(Polycarbonate, PC)를 핀셋과 질소건을 이용하여 제거한다. 이때 표면에 노출된 선형 미세 나노 패턴을 에탄올로 부드럽게 행군다. UV 경화가 가능한 PUA 전구체를 패턴상에 떨어뜨려 도포한 후, 110 μm 두께의 PET 필름으로 덮는다. UV (365 nm, 15-18 mW/cm<sup>2</sup>) 빛을 2분간 가하여 경화한다. CD로부터 템플릿을 떼어낸 후, 추가적으로 UV를 1시간동안 가해 PUA 템플릿에 잔존할 수 있는 중합 라디칼(radical)이나 잔류 미경화 아크릴 레이트(acrylate)를 제거한다. 위의 몰드 제작 방법은 이해하기 쉽도록 Fig. 1에 나타내었다.

### 2.3. 소자 제작

N타입으로 도핑된 저저항(resistivity < 0.005 Ωcm) 실리콘(silicon) 웨이퍼(wafer)를 3.5 x 3.5 cm<sup>2</sup> 크기로 자른 후 황산(H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)과 과산화수소(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)를 이용하여 피라나(piranha) 처리를 하였다. 이때, 황산과 과산화수소의 비율은 7:3으로, 250 °C에서 20 분간 가열하여 웨이퍼 표면에 있는 유기물을 제거해준다. 피라나 용액이 상온으로 식게 되면 증류수를 이용하여 기판을 행궈주고, 증류수를 담은 비커에 기판을 넣고 30 분 동안

초음파(sonication)세척을 해준다. 이 작업을 2회 반복한다. 세척한 기판을 질소건(gun)을 이용하여 잘 말려준 후 10 분간 UV 오존에 노출시킨다. 준비한 기판에 수산화기에 의한 트랩(trap)을 제거하기 위해 divinyltetramethyl disiloxane-bis (benzocyclobutene) (BCB) 용매(V<sub>BCB</sub>:V<sub>mesitylene</sub>=1: 30)를 사용하여 SiO<sub>2</sub> 표면 위에 스핀 코팅 후 200 °C에서 30분간 열처리해준다[15]. C<sub>8</sub>-BTBT 용매는 클로로벤젠을 3 wt% 희석해 충분히 교반시킨다. 다 녹으면 반도체 층을 스핀 코팅할 기판과 미세 패턴을 만들 기판들을 구분하여 각각 다른 방법으로 코팅을 한다. 소프트 리소그래피 방법과 대조할 C<sub>8</sub>-BTBT스핀 코팅 소자는 BCB를 코팅한 기판 위에 C<sub>8</sub>-BTBT 용매를 적정량 떨어뜨린 후 30 초 동안 1500 rpm으로 스핀 코팅한다. 이어서 소프트 리소그래피 방법으로 C<sub>8</sub>-BTBT미세 나노 패턴을 형성할 기판을 핫 플레이트(hot plate)에 올려놓고 50 °C로 데워준 후 마이크로 피펫(pipet)을 이용하여 4 μL를 기판에 떨어뜨린다. 이 용액 위에 CD에서 추출한 폴리우레탄 필름 몰드를 아래에서부터 천천히 올린 후 롤러(roller)로 눌러 모세관 힘으로 패턴을 형성시킨다. 끝으로 소스(source)와 드레인(drain)전극은 세도우 마스크(shadow mask)를 이용하여 금(gold, Au)을 진공 열 증착하였다. 이때, 소프트 리소그래피 기판은 광학 현미경을 이용해 미세 패턴 방향을 찾고 그 곳에 마스크(masking) 후 전극을 증착하였다.

### 2.4. 특성 분석

필름의 형태학을 확인하기 위하여 AFM (atomic force microscopy) (XE-100, Park systems)을 이용하였다. 필름의 결정성과 분자 배열을 확인하기 위하여 2D-GIWAXS (Two-Dimensional Grazing Incidence Wide-Angle X-ray Diffraction) (포항 가속기 연구소, high-resolution synchrotron X-ray beam source (λ = 1.23 Å), 입사각 0.15°, 3C 빔 라인)을 이용하였다.

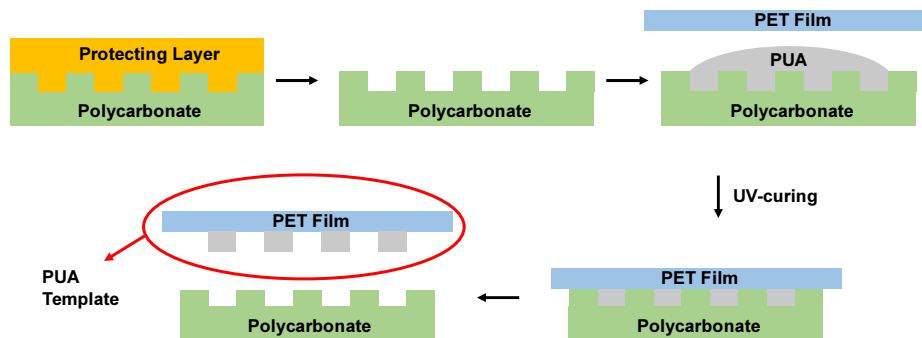


Figure 1. Schematic illustration of how to make a mold using CDs.

### 3. 결과 및 고찰

이 연구의 궁극적 목표는 OFET에 절연층 BCB, 반도체층 C<sub>8</sub>-BTBT를 이용하여 용액 공정 중 연구실 스케일에서 흔히 사용하는 스핀 코팅 방법과 소프트 리소그래피 방법에서의 전기적 특성 비교이다. OFET을 만들 당시 C<sub>8</sub>-BTBT를 코팅할 때 스핀 코팅 방법과 소프트 리소그래피 방법을 사용했으며 이외의 다른 조건은 동일하게 제작되었다. Fig. 2는 본 연구에서 반도체로 사용한 BCB, C<sub>8</sub>-BTBT 분자 구조와 위 두 방법을 적용한 소자의 차이를 알기 쉽게 표현한 소자 모식도이다.

미세 나노 패턴은 스핀 코팅 방법과 달리 표면 전체가 코팅되는 것이 아니라 나노 와이어(nanowire, NW)가 생성된다. 그에 따른 전기적 특성은 전달 곡선(transfer curve) Fig. 3에 나타내었다.

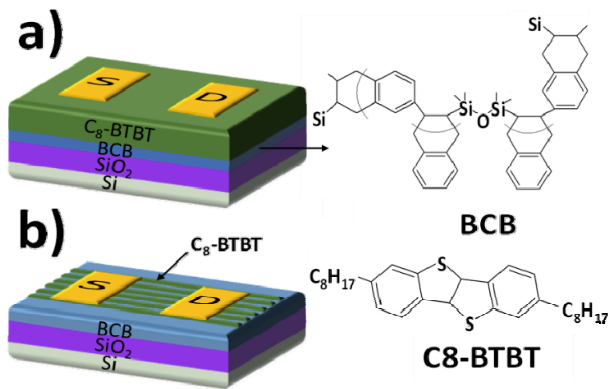


Figure 2. Chemical structure of the C<sub>8</sub>-BTBT and BCB and OFET device schematic illustration.

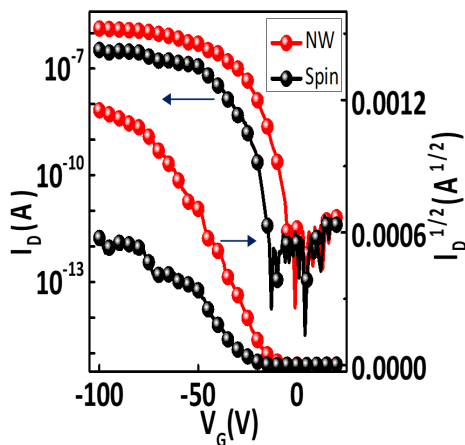


Figure 3. Transfer characteristics of OFETs prepared with C<sub>8</sub>-BTBT.

절연체 물질인 BCB 코팅은 SiO<sub>2</sub> coverage 가 크다는 장점을 가졌다. 즉, BCB가 SiO<sub>2</sub> 표면을 전체적으로 덮기 때문에 반응하지 못하고 남은 수산화기(-OH)가 존재하지 않게 되고 트랩이 없는 절연층을 만들 수 있다 [15,16]. 이러한 BCB를 스핀 코팅한 C<sub>8</sub>-BTBT 소자의 경우 이동도는 약 0.0036 cm<sup>2</sup>/Vs이며, 점멸비(I<sub>on</sub>/I<sub>off</sub>)는 4.3 x 10<sup>3</sup> 값을 보였다. 문턱 전압(threshold voltage)은 -2.61 V, subthreshold slope (SS)는 0.55 V/decade 로 측정되었다. 반면에 소프트 리소그래피를 이용하여 미세 패턴을 형성한 C<sub>8</sub>-BTBT 소자의 경우에는 이동도는 약 0.086 cm<sup>2</sup>/Vs이며, 점멸비는 8.3 x 10<sup>3</sup>, 문턱 전압은 -2.52 V, SS는 0.49 V/decade 로 측정되었다. 이 두가지 방법을 적용한 C<sub>8</sub>-BTBT 소자의 특성은 다음 Table 1에 요약하였다.

두 소자의 전기적 특성을 비교하면, 소프트 리소그래피를 도입한 OFET의 이동도가 높았다. 다시 말해, 스핀 코팅법으로 제작한 소자에 비해 소프트 리소그래피

Table 1. Summarized Electrical Properties of BCB OFET.

	Mobility (cm <sup>2</sup> /Vs)	Threshold voltage (V <sub>th</sub> )	SS (V/decade)	I <sub>on</sub> /I <sub>off</sub>
Spin-coated BCB	0.0036	-2.61	0.55	4.3 x 10 <sup>3</sup>
BCB NW	0.086	-2.52	0.49	8.3 x 10 <sup>3</sup>

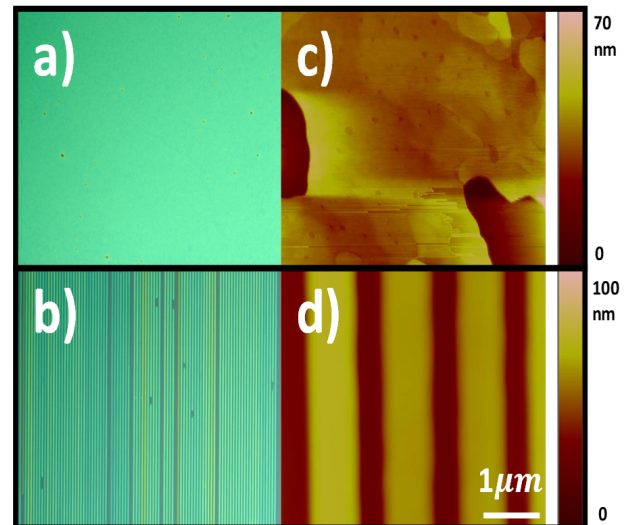


Figure 4. Optical microscope (OM) image from a) the spin-coated C<sub>8</sub>-BTBT films on BCB-covered SiO<sub>2</sub>, b) C<sub>8</sub>-BTBT nanowires on BCB-covered SiO<sub>2</sub> and typical AFM image of c) the spin-coated C<sub>8</sub>-BTBT films on BCB-covered SiO<sub>2</sub>, d) C<sub>8</sub>-BTBT nanowires on BCB-covered SiO<sub>2</sub>.

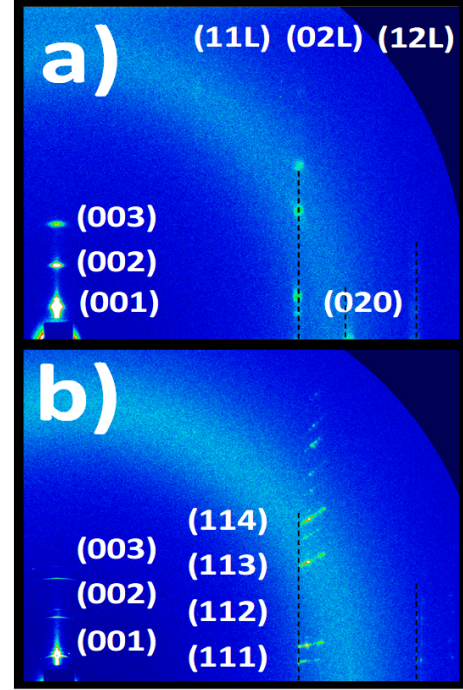
피 C<sub>8</sub>-BTBT 소자가 나노 패 턴 형 성에 따른 결정성 향상 때문에 전기적인 특성이 향상되었음을 의미한다. Fig. 4는 광학 현미경(optical microscope, OM) 이미지와 원자력 현미경(atomic force microscopy, AFM) 이미지를 통해 모폴로지(morphology)를 비교해 보았다.

스핀 코팅시 BCB의 광학 현미경 이미지는 핀홀(pin hole)생성이 적게 생성되어 트랩이 적음에도 불구하고 소프트 리소그래피 소자보다 낮은 전기적 특성을 가져온다. 소프트 리소그래피 소자들은 광학현미경 이미지나 원자 현미경 이미지상으로 모두 미세 나노 패 턴이 잘 생성되어 있음을 볼 수 있다. 결과적으로, 위 이미지에서는 소프트 리소그래피와 달리 스핀 코팅한 C<sub>8</sub>-BTBT는 분자가 균일하게 배열되지 않았다. 또한, 원자 현미경 이미지에서 스핀 코팅한 C<sub>8</sub>-BTBT와 소프트 리소그래피를 한 C<sub>8</sub>-BTBT가 다른 박막 형태를 보여준다. 특히, 소프트 리소그래피에서는 CD 몰드와 동일한 크기인 나노 패 턴이 형성 되어있음을 확인할 수 있다. 이에 C<sub>8</sub>-BTBT의 결정 분자 배열이 향상되어 결정 입계(grain boundary)를 줄여 흐르는 전류의 양이 증가하므로 전기적 특성이 스핀 코팅한 C<sub>8</sub>-BTBT보다 향상된 것이다[17]. Fig. 5는 XRD 이미지이다.

XRD 이미지 역시 소프트 리소그래피를 한 C<sub>8</sub>-BTBT 분자가 일정 방향으로 잘 배열되었으며 결정 정도 역시 더 큰 것을 알 수 있다[18]. 다음은 방정식을 이용하여 C<sub>8</sub>-BTBT 용액이 PUA 템플릿의 미세 나노 패 턴을 통해 상승할 수 있는 최대 높이를 계산하였다[19].

$$\begin{aligned} h_{max} &= \frac{2\gamma \cos\theta}{\rho g r} \\ &= \frac{2 * 30.02 \frac{\text{dyne}}{\text{cm}} * 0.64}{1.11 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} * \frac{980 \text{ cm}}{\text{s}^2} * 530 \text{ nm}} \\ &= 666 \text{ nm} \end{aligned}$$

여기서 위의 방정식의 각 계수는 다음과 같다.  $h_{max}$ 는 최대 높이,  $\gamma$ 는 클로로벤젠과 공기 계면의 표면 에너지,  $r$ 은 패 턴 폭,  $\theta$ 는 클로로벤젠과 템플릿 계면에서의 접촉각,  $\rho$ 는 클로로벤젠의 밀도, 그리고  $g$ 는 중력으로 일정하다. 위 실험에서는 50 °C에서  $\rho = 1.11 \text{ g/cm}^3$ ,  $\gamma = 30.02 \text{ dyne/cm}$ ,  $\theta = 50^\circ$  및  $r = 530 \text{ nm}$ 을 방정식에 대입하면  $h_{max}$ 는 666 nm로 템플릿의 높이인 200 nm보다 크다[10]. 이 계산 결과로부터 템플릿과 기판 사이에 강력한 모세관 힘이 존재함을 알 수 있으며, 이 힘에 의해 C<sub>8</sub>-BTBT 나노 와이어 성장이 일어났다. 용매가 증발함에 따라, C<sub>8</sub>-BTBT 분자는 채널에서 자가 조립된다. 결과적으로, 약 650 nm 폭의 나노 와이어가 성장하였다.



**Figure 5.** 2D-GIWAXS patterns. a) the spin-coated C<sub>8</sub>-BTBT films on BCB-covered SiO<sub>2</sub> and b) C<sub>8</sub>-BTBT nanowires on BCB-covered SiO<sub>2</sub>.

#### 4. 결론

본 연구에서는 CD의 나노 패 턴을 이용한 소프트 리소그래피 방법으로 C<sub>8</sub>-BTBT OFET 소자를 제작하였다. 이는 기존에 많이 사용되고 있는 스핀 코팅 방법과 비교해보고자 트랩이 없는 절연층 BCB를 이용하여 스핀 코팅 방법과 미세 패 턴을 만들 수 있는 소프트 리소그래피 방법 두가지 소자를 제작하였고, C<sub>8</sub>-BTBT 반도체 층의 정공 이동도와 전기적 특성을 비교하는 연구를 진행하였다. 특히, 소프트 리소그래피를 한 C<sub>8</sub>-BTBT 소자는 스핀 코팅 방법과는 달리 나노 와이어 패 턴이 고르게 형성되었으며 결정성 역시 크게 향상되는 것을 확인할 수 있었다. 소프트 리소그래피 방법을 이용한 C<sub>8</sub>-BTBT 소자는 스핀 코팅 소자에 비해 약 20배 이상 높은 이동도를 보이며 더 우수한 전기적 성능을 가져왔다.

#### 감사의 글

이 논문은 2022학년도 한국교통대학교의 해외파견 연구교수지원금을 받아 수행한 연구이며 이에 감사드립니다.

## References

1. J. Oh, J.H. Kim, S.Y. Lee, M.S. Kim, J.M. Kim, K. Park, Y.S. Kim, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, **18**(1), (2018).
2. H Ren, N Cui, Q Tang, Y Tong, X Zhao, Y Liu, *Small*, **14**(33), (2018).
3. M. Mizukami, S.I. Cho, K. Watanabe, M. Abiko, Y. Suzuri, S. Tokito, J. Kido, *IEEE Electron Device Letters*, **39**(1), (2018).
4. H.J. Cheon, T.K. An, Y.H. Kim, *Macromolecular Research*, **30**(2), 71 (2022).
5. M.R. Niazi, R. Li, E.Q. Li, A.R. Kirmani, M. Abdelsamie, Q. Wang, W. Pan, M.M. Payne, J.E. Anthony, D.M. Smilgies, S.T. Thoroddsen, E.P. Giannelis, A. Amassian, *Nature Communications*, **6**, 8598 (2015).
6. K. Kim, M. Jang, M. Lee, T. K. An, J. E. Anthony, S. H. Kim, H. Yang, C.E. Park, *Journal of Materials Chemistry C*, **4**(29), 6996 (2016).
7. D. Ji, L. Jiang, L. Jiang, X. Fu, H. Dong, J. Yu, W. Hu, *Chemical Communications*, **50**(61) 8328 (2014).
8. H.-j. Kwon, K. Kim, T.K An, S.H. Kim, C.E. Park, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, **75**, 187 (2019).
9. A. Kim, K. S. Jang, J. Kim, J. C. Won, M. H. Yi, H. Kim, D. K. Yoon, T. J. Shin, M. H. Lee, J. W. Ka, Y. H. Kim, *Advanced Materials*, **25**(43), 6219 (2013).
10. K. Kim, J. Cho, H. Jhon, J. Jeon, M. Kang, C.E. Park,, J. Lee, T.K. An, *Nanotechnology*, **28**(20), 205304 (2017).
11. A.J. Smith, C. Wang, D. Guo, C. Sun, J. Huang, *Nature Communications*, **5**, 5517 (2014).
12. H. Ebata, T. Izawa, E. Miyazaki, K. Takimiya, M. Ikeda, H. Kuwabara, T. Yui, *Journal of The American Chemical Society*, 129(51), 15732 (2007).
13. T. Izawa, E. Miyazaki, K. Takimiya, *Advanced Materials*, **20**(18), 3388 (2008).
14. K. Kim, Y. Rho, Y. Kim, S.H. Kim, S.G. Hahm, C.E. Park, *Advanced Materials*, **28**(16), 3209 (2016).
15. M. Ullah, D.M. Taylor, R. Schwödiauer, H. Sitter, S. Bauer, N.S. Sariciftci, T.B. Singh, *Journal of Applied Physics*, **106**(11), 114505, (2009).
16. H. Sirringhaus, *Advanced Materials*, **17**(20), 2411 (2005).
17. Z. Zhou, Z. Zhang, Q. Wu, X. Ji, J. Wang, X. Zeng, S.-P. Feng, P. K. L. Chan, *ACS Applied Materials & Interfaces*, **10**(41), 35395 (2018).
18. S. Kwon, J. Kim, G. Kim, K. Yu, Y.-R. Jo, B.-J. Kim, J. Kim, H. Kang, B. Park, K. Lee, *Advanced Materials*, **27**(43), 6870 (2015).
19. K.Y. Suh, H.H. Lee, *Advanced Functional Materials*, **12**(6-7), 405 (2002).
20. J. Oh, J.H. Kim, S.Y. Lee, M.S. Kim, J.M. Kim, K. Park, Y.S. Kim, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, **18**(1), (2018).
21. H. Ren, N. Cui, Q. Tang, Y. Tong, X. Zhao, Y. Liu, *Small*, **14**(33), (2018).
22. M. Mizukami, S.I. Cho, K. Watanabe, M. Abiko, Y. Suzuri, S. Tokito, J. Kido, *IEEE Electron Device Letters*, **39**(1), (2018).
23. H.J. Cheon, T.K. An, Y.H. Kim, *Macromolecular Research*, **30**(2), 71 (2022).
24. M.R. Niazi, R. Li, E.Q. Li, A.R. Kirmani, M. Abdelsamie, Q. Wang, W. Pan, M.M. Payne, J.E. Anthony, D.M. Smilgies, S.T. Thoroddsen, E.P. Giannelis, A. Amassian, *Nature Communications*, **6**, 8598 (2015).