



- (51) 국제특허분류: C23C 4/12 (2006.01) C23C 4/04 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2014/000193
- (22) 국제출원일: 2014년 1월 8일 (08.01.2014)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보: 10-2013-0002613 2013년 1월 9일 (09.01.2013) KR
- (71) 출원인: 고려대학교 산학협력단 (KOREA UNIVERSITY RESEARCH AND BUSINESS FOUNDATION) [KR/KR]; 136-701 서울시 성북구 안암로 145 (안암동 5가 1), Seoul (KR).
- (72) 발명자: 윤석구 (YOON, Suk Goo); 135-270 서울시 강남구 남부순환로 2907 (대치 4동), Seoul (KR). 박정재 (PARK, Jung Jae); 142-823 서울시 강북구 인수봉로 6길 8, 401 (미아동, 파크빌), Seoul (KR). 김도연 (KIM, Do Yeon); 150-771 서울시 영등포구 당산로 214, 424-1302 (당산동 5가, 당산 삼성 래미안 4차아파트), Seoul (KR).
- (74) 대리인: 홍동우 (HONG, Dong Woo); 137-070 서울시 서초구 반포대로 108, 3층(서초동, 양원빌딩), Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

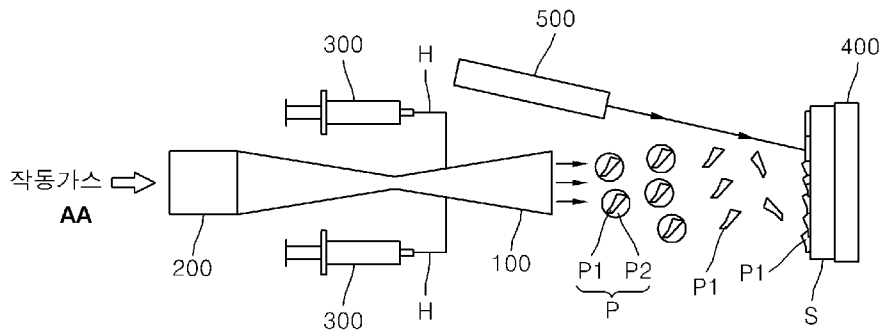
(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

(54) Title: LOW TEMPERATURE SPRAY TYPE GRAPHENE DEPOSITION APPARATUS

(54) 발명의 명칭: 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치



AA ... Working gas

(57) Abstract: The present invention relates to a low temperature spray type graphene deposition apparatus, and provides a low temperature spray type graphene deposition apparatus which can easily deposit and coat graphene particles on a substrate through a simple spray method for spraying through a supersonic spray nozzle, a mixed solution of the graphene particles and a volatile liquid, without a vacuum process such as a chemical vapor deposition method and a complicated manufacturing process such as separate etching and transfer processes and the like, can easily deposit and coat the graphene particles even on the surface of a flexible substrate susceptible to high heat and the like by depositing and coating the graphene particles in a relatively low temperature state, and can be utilized in more various ways.

(57) 요약서: 본 발명은 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치에 관한 것으로, 화학기상증착법과 같은 진공 공정 및 별도의 에칭과 전사 과정 등의 복잡한 제조 공정을 거치지 않고, 그래핀 입자와 휘발성 액체를 혼합한 혼합 용액을 초음속 분사 노즐을 통해 분사하는 단순 스프레이 방식을 통해 그래핀 입자를 기판에 용이하게 증착 코팅시킬 수 있고, 상대적으로 저온 상태에서 그래핀 입자를 증착 코팅시킬 수 있도록 함으로써, 고온의 열에 취약한 유연 기판 등의 표면에도 그래핀 입자의 증착 코팅을 용이하게 수행할 수 있으며 더욱 다양한 용도로 활용할 수 있는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 제공한다.

명세서

발명의 명칭: 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치

기술분야

- [1] 본 발명은 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치에 관한 것이다. 보다 상세하게는 화학기상증착법과 같은 진공 공정 및 별도의 에칭과 전사 과정 등의 복잡한 제조 공정을 거치지 않고, 그래핀 입자와 휘발성 액체를 혼합한 혼합 용액을 초음속 분사 노즐을 통해 분사하는 단순 스프레이 방식을 통해 그래핀 입자를 기판에 용이하게 증착 코팅시킬 수 있고, 상대적으로 저온 상태에서 그래핀 입자를 증착 코팅시킬 수 있도록 함으로써, 고온의 열에 취약한 유연 기판 등의 표면에도 그래핀 입자의 증착 코팅을 용이하게 수행할 수 있으며 더욱 다양한 용도로 활용할 수 있는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치에 관한 것이다.

[2]

배경기술

- [3] 그래핀(Graphene)은 탄소가 육각형의 형태로 서로 연결되어 벌집 모양의 2차원 평면 구조를 이루는 물질로서, 그 특징은 두께가 매우 얇고 투명하고 우수한 전기 전도성을 가지는 차세대 물질로 알려져 있다. 이러한 그래핀의 특수성을 이용하여 최근 투명 디스플레이 또는 플렉서블(Flexible) 디스플레이 등의 전자 장비에 적용하려는 다양한 연구와 노력이 이루어지고 있다.
- [4] 일반적으로 그래핀은 금속 촉매를 이용한 화학기상증착법(CVD : Chemical vapor deposition)에 의해 금속 촉매 상부에 형성하게 된다. 그 후 금속 촉매를 에칭 과정(etching process)을 통해 제거한 뒤 유연 기판(flexible substrate)과 유리 기판 등의 다양한 기판에 전사(tranfer)시켜 그래핀 박막을 얻게 된다.
- [5] 그러나 이러한 에칭과 전사 과정은 화학적 안정성의 문제와 비용과 시간이 상대적으로 많이 소요되는 문제가 있었다. 따라서, 그래핀을 이용하여 기판에 그래핀 박막을 형성하는 작업이 쉽지 않았으며, 그 이용 범위가 크게 제한되고 있다는 문제가 있었다.
- [6] 선행기술로는 국내공개특허 제10-2012-0007998호 등이 있다.

[7]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [8] 본 발명은 종래 기술의 문제점을 해결하기 위해 발명한 것으로서, 본 발명의 목적은 화학기상증착법과 같은 진공 공정 및 별도의 에칭과 전사 과정 등의 복잡한 제조 공정을 거치지 않고, 그래핀 입자와 휘발성 액체를 혼합한 혼합 용액을 초음속 분사 노즐을 통해 분사하는 단순 스프레이 방식을 통해 그래핀 입자를 기판에 용이하게 증착 코팅시킬 수 있는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착

장치를 제공하는 것이다.

[9]

[10] 본 발명의 다른 목적은 상대적으로 저온 상태에서 그래핀 입자를 증착 코팅시킬 수 있도록 함으로써, 고온의 열에 취약한 유연 기관 등의 표면에도 그래핀 입자의 증착 코팅을 용이하게 수행할 수 있으며 더욱 다양한 용도로 활용할 수 있는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 제공하는 것이다.

[11]

과제 해결 수단

[12] 본 발명은, 기관을 향해 작동 가스를 초음속 상태로 분사하는 초음속 분사 노즐; 상기 초음속 분사 노즐에 공급되는 작동 가스를 가열하는 히팅부; 및 그래핀 입자와 휘발성 액체가 혼합된 상태의 혼합 용액이 저장되고, 상기 혼합 용액이 상기 초음속 분사 노즐을 통해 상기 작동 가스와 함께 분사되도록 상기 초음속 분사 노즐에 연결되는 용액 공급부를 포함하고, 상기 혼합 용액은 상기 그래핀 입자가 함유된 미립자 액적 상태로 상기 초음속 분사 노즐을 통해 분사되고, 분사되는 과정에서 상기 휘발성 액체가 증발되어 상기 그래핀 입자가 상기 기관에 증착 코팅되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 제공한다.

[13]

[14] 이때, 상기 초음속 분사 노즐은 상기 작동 가스가 유동하도록 내부 공간에 가스 유로가 형성되는 노즐 하우징; 및 상기 노즐 하우징에 형성된 가스 유로의 중단부에 직각 방향으로 연통되도록 상기 노즐 하우징에 형성되는 용액 주입구를 포함하고, 상기 용액 공급부는 상기 가스 유로 내부로 상기 혼합 용액이 공급되도록 상기 용액 주입구에 연통되게 결합될 수 있다.

[15]

[16] 또한, 상기 가스 유로에 연통되는 상기 용액 주입구의 단면 형상은 상기 작동 가스의 유동 방향에 대한 직각 방향으로 길게 형성될 수 있다.

[17]

[18] 또한, 상기 가스 유로는 양단에 유입구 및 배출구가 형성되고, 중단부에는 유동 단면적이 감소하는 교축부가 형성되며, 상기 교축부로부터 상기 배출구로 향하는 구간에는 상기 배출구로 갈수록 유동 단면적이 증가하는 방향으로 경사지도록 경사면이 형성될 수 있다.

[19]

[20] 또한, 상기 용액 주입구는 상기 경사면에 형성될 수 있다.

[21]

[22] 또한, 상기 용액 주입구는 상기 경사면에 상기 작동 가스의 유동 방향에 대한 직각 방향으로 길게 형성될 수 있다.

[23]

[24] 또한, 상기 초음속 분사 노즐은 스틸, 스테인리스 스틸 및 텅스텐 카바이드 중 어느 하나의 재질로 형성될 수 있다.

[25]

[26] 또한, 상기 그래핀 입자가 상기 기관에 증착 형성되는 과정에서 상기 기관을 가열할 수 있도록 별도의 가열판이 구비될 수 있다.

[27]

[28] 또한, 상기 가열판은 일면에 상기 기관이 안착될 수 있도록 형성되어 열전도 방식으로 상기 기관을 가열하도록 구성될 수 있다.

[29]

[30] 또한, 상기 기관에 증착 코팅된 그래핀층에 레이저빔을 조사할 수 있도록 레이저 조사기가 구비될 수 있다.

[31]

발명의 효과

[32] 본 발명에 의하면, 화학기상증착법과 같은 진공 공정 및 별도의 에칭과 전사 과정 등의 복잡한 제조 공정을 거치지 않고, 그래핀 입자와 휘발성 액체를 혼합한 혼합 용액을 초음속 분사 노즐을 통해 분사하는 단순 스프레이 방식을 통해 그래핀 입자를 기관에 용이하게 증착 코팅시킬 수 있는 효과가 있다.

[33]

[34] 또한, 상대적으로 저온 상태에서 그래핀 입자를 증착 코팅시킬 수 있도록 함으로써, 고온의 열에 취약한 유연 기관 등의 표면에도 그래핀 입자의 증착 코팅을 용이하게 수행할 수 있으며 더욱 다양한 용도로 활용할 수 있는 효과가 있다.

[35]

[36] 또한, 초음속 분사 노즐을 통해 분사되는 작동 가스를 히팅부를 통해 가열하고, 이를 통해 미립자 액적을 가열함으로써, 휘발성 액체의 증발을 가속시키고, 이에 따라 불순물이 제거된 상태로 투과도 및 표면 저항 특성이 우수한 그래핀 증착 코팅이 가능하다는 효과가 있다.

[37]

[38] 또한, 그래핀 입자가 함유된 혼합 용액을 초음속 분사 노즐로 공급하는 용액 주입구의 형상을 가스 유동 방향의 직각 방향으로 길게 형성함으로써, 혼합 용액의 미립화를 더욱 활성화하고 그래핀 입자의 증착 영역을 더욱 넓은 영역으로 확장시킬 수 있는 효과가 있다.

[39]

[40] 또한, 기관의 일면에 별도의 전도성 가열판을 장착함으로써, 그래핀 필름에 형성될 수 있는 휘발성 액체의 액막을 제거할 수 있고, 이에 따라 더욱 고품질의 코팅층을 얻을 수 있는 효과가 있다.

[41]

도면의 간단한 설명

- [42] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치의 구성을 개념적으로 도시한 개념도,
- [43] 도 2는 도 1에 도시된 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치에 가열판 및 레이저 조사기가 더 구비된 구성을 개념적으로 도시한 개념도,
- [44] 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀층을 현미경으로 관찰한 사진,
- [45] 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀층에 대한 X선 회전분석기 분석 결과 그래프,
- [46] 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀 필름에 대한 가시광 투과도를 실험적으로 테스트한 결과를 나타내는 그래프,
- [47] 도 6은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 구성을 개략적으로 도시한 분해 사시도,
- [48] 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 내부 구조를 개략적으로 도시한 단면도,
- [49] 도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 용액 주입구 형상을 예시적으로 도시한 도면이다.

[50]

발명의 실시를 위한 형태

- [51] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 첨부된 도면들을 참조하여 상세히 설명한다. 우선 각 도면의 구성요소들에 참조부호를 부가함에 있어서, 동일한 구성요소들에 대해서는 비록 다른 도면상에 표시되더라도 가능한 한 동일한 부호를 가지도록 하고 있음에 유의해야 한다. 또한, 본 발명을 설명함에 있어, 관련된 공지 구성 또는 기능에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명은 생략한다.

[52]

- [53] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치의 구성을 개념적으로 도시한 개념도이고, 도 2는 도 1에 도시된 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치에 가열판 및 레이저 조사기가 더 구비된 구성을 개념적으로 도시한 개념도이고, 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀층을 현미경으로 관찰한 사진이며, 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀층에 대한 X선 회전분석기 분석 결과 그래프이고, 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치를 통해 형성된 그래핀 필름에 대한 가시광 투과도를 실험적으로 테스트한 결과를 나타내는 그래프이다.

- [54] 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치는 그래핀 입자를 비진공 공정인 저온 스프레이 방식을 통해 기판 표면에 증착 코팅할 수 있는 장치로서, 초음속 분사 노즐(100)과, 히팅부(200)와, 용액 공급부(300)를 포함하여 구성된다.
- [55] 초음속 분사 노즐(100)은 기판(S)을 향해 작동 가스를 초음속 상태로 분사하는 장치로서, 작동 가스의 초음속 분사 과정에서 용액 공급부(300)로부터 혼합 용액을 공급받아 작동 가스와 함께 혼합 용액을 미립자 액적(P) 상태로 분사하도록 구성된다. 이때, 사용되는 작동 가스는 혼합 용액과의 화학 반응이 억제될 수 있도록 공기, 수소, 질소, 헬륨 등 화학적으로 안정한 물질을 사용하는 것이 바람직하다.
- [56]
- [57] 이러한 초음속 분사 노즐(100)의 재질은 스틸, 스테인리스 스틸 또는 텅스텐 카바이드 등으로 형성될 수 있으며, 텅스텐 카바이드로 제작하게 되면, 재질 자체의 내마모성과 내열성이 우수하여 가열된 작동 가스와 대기 혹은 외부와의 열전달이 최소화되고, 이에 따라 작동 가스의 초음속 유동 속도를 극대화할 수 있다.
- [58] 히팅부(200)는 초음속 분사 노즐(100)에 공급되는 작동 가스를 가열하는 장치로서, 초음속 분사 노즐(100)의 유입부 전방에 장착되어 작동 가스가 초음속 분사 노즐(100)에 유입되는 과정에서 가열되도록 구성될 수도 있고, 작동 가스의 저장조를 직접 가열하도록 장착되는 방식으로 구성될 수도 있는 등 다양하게 변경 가능하다. 히팅부(200)에 의한 작동 가스의 가열 온도는 350°C 정도로 설정될 수 있다. 이와 같이 히팅부(200)를 통해 작동 가스를 가열함으로써, 이후 용액 공급부(300)의 혼합 용액을 작동 가스와 함께 분사하는 과정에서 혼합 용액을 미립자 액적(P) 상태로 용이하게 유도할 수 있고, 미립자 액적(P) 상태에서 휘발성 액체(P2)의 증발을 더욱 가속화시킬 수 있다.
- [59] 용액 공급부(300)는 그래핀 입자(P1)와 휘발성 액체(P2)가 혼합된 상태의 혼합 용액이 저장되도록 형성되고, 저장된 혼합 용액이 초음속 분사 노즐(100)을 통해 작동 가스와 함께 분사되도록 초음속 분사 노즐(100)에 연결된다. 이때, 휘발성 액체(P2)는 에탄올과 같이 상온에서도 쉽게 휘발할 수 있는 액체가 적용되는 것이 바람직하다.
- [60]
- [61] 이러한 용액 공급부(300)는 시린저 펌프와 같이 일정량의 혼합 용액을 초음속 분사 노즐(100)에 공급하는 방식으로 구성될 수도 있으며, 이와 달리 단순히 혼합 용액을 저장하는 형태로 구성되고 초음속 분사 노즐(100)의 작동 가스 분사시 발생하는 압력 강하 현상에 의해 혼합 용액이 초음속 분사 노즐(100)로 유입되어 함께 분사되도록 하는 방식으로 구성될 수도 있다. 이때, 혼합 용액이 초음속 분사 노즐(100)로 공급되는 유량은 수십 $\mu\text{l}/\text{min}$ ~ 수백 $\mu\text{l}/\text{min}$ 로 설정될 수 있으며, 그 공급 유량은 사용자의 필요에 따라 다양하게 조절할 수 있고, 이에

따라 그래핀 필름의 다양한 적용 분야에 사용할 수 있다.

[62]

[63] 이와 같은 구조에 따라 초음속 분사 노즐(100)을 통해 작동 가스를 분사하면, 용액 공급부(300)로부터 혼합 용액이 초음속 분사 노즐(100)로 유입되어 작동 가스와 함께 초음속 상태로 분사된다. 이때, 혼합 용액은 작동 가스의 온도에 의해 가열됨과 동시에 초음속 상태로 가속되기 때문에, 초음속 분사 노즐(100)을 통해 분사되는 과정에서 미립자 액적(P) 상태로 분사된다. 즉, 도 1에 도시된 바와 같이 그래핀 입자(P1)를 핵으로 하여 외부 공간에 휘발성 액체(P2)가 응결된 형태의 미립자 액적(P) 상태로 초음속 분사 노즐(100)을 통해 분사된다.

[64]

[65] 이러한 미립자 액적(P)은 분사되는 과정에서 초음속 분사 노즐(100)의 출구에서부터 기관(S)의 표면에 도달하는 동안 휘발성 액체(P2)가 증발하게 되고, 따라서, 기관(S)의 표면에는 휘발성 액체(P2)가 증발한 상태로 그래핀 입자(P1)가 증착 코팅된다. 특히, 작동 가스가 히팅부(200)에 의해 가열된 상태로 분사되므로, 미립자 액적(P)이 분사되는 동안에도 작동 가스의 온도에 의해 미립자 액적(P)이 가열되므로 휘발성 액체(P2)의 증발이 더욱 활발하게 일어나고, 이에 따라 기관(S)의 표면에는 더욱 순수한 상태의 그래핀 입자(P1)가 증착 코팅될 수 있다.

[66]

즉, 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치는 작동 가스를 가열하여 초음속 분사 노즐(100)을 통해 분사하고, 그래핀 입자(P1)가 함유된 혼합 용액을 초음속 분사 노즐(100)을 통해 미립자 액적(P) 상태로 작동 가스와 함께 분사함으로써, 분사하는 과정에서 휘발성 액체(P2)가 증발하고 그래핀 입자(P1)만 기관(S)의 표면에 증착 코팅되도록 하는 방식으로 구성된다.

[67]

따라서, 종래 기술과 달리 진공 공정인 화학기상증착법을 이용하지 않아도 되고, 별도의 에칭과 전사 과정 등의 복잡한 제조 공정을 거치지 않아도 단순히 스프레이 방식을 통해 그래핀 입자(P1)를 기관(S)의 표면에 증착 코팅시킬 수 있다. 또한, 상대적으로 저온 상태에서 그래핀 입자(P1)를 증착 코팅시킬 수 있기 때문에, 고온의 열에 취약한 유연 기관 등의 표면에도 그래핀 입자(P1)의 증착 코팅을 용이하게 수행할 수 있고, 더욱 다양한 용도로 활용할 수 있다.

[68]

[69] 한편, 본 발명의 일 실시예에 따른 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치는 도 2에 도시된 바와 같이 초음속 분사 노즐(100)의 분사를 통해 그래핀 입자(P1)가 기관(S)의 표면에 증착 형성되는 과정에서 기관(S)을 가열할 수 있도록 별도의 가열판(400)이 구비될 수 있다. 이러한 가열판(400)은 일면에 기관(S)이 안착될 수 있도록 형성되어 열전도 방식으로 기관(S)을 가열할 수 있도록 구성될 수 있다. 예를 들면, 가열판(400)은 기관(S)이 안착될 수 있는 스테이지 형태로 내부에는 히팅 코일(미도시)이 내장된 형태로 구성될 수 있다.

[70]

이와 같이 가열판(400)에 의해 기관(S)을 가열함으로써, 기관(S)의 표면에

증착될 수 있는 휘발성 액체(P2)의 액막을 증발 제거할 수 있다. 즉, 초음속 분사 노즐(100)로부터 분사되는 미립자 액적(P)은 전술한 바와 같이 기관(S)의 표면에 도달하는 과정에서 휘발성 액체(P2)가 증발하게 되지만, 미립자 액적(P)이 서로 결합되어 액적의 크기가 증가하게 되는 경우 또는 혼합 용액을 과잉 공급하는 경우 등과 같이 특정 상황에서는 미립자 액적(P)의 휘발성 액체(P2)가 완전히 증발하지 않고 기관(S)의 표면에 도달할 수 있고, 이 경우 기관(S)의 표면에는 휘발성 액체(P2)로 인한 액막이 생성될 수 있다. 이렇게 생성된 액막은 주변의 그래핀 입자(P1)들을 밀어내게 되고 그래핀 입자(P1)들을 서로 뭉치게 하는 등 증착 코팅의 품질을 저하시키는 원인이 될 수 있다. 따라서, 기관(S)의 표면에 생성될 수 있는 액막을 제거할 수 있도록 기관(S)의 일면에 접촉하여 열전도 방식으로 기관(S)을 가열할 수 있는 가열판(400)을 장착하고, 이를 통해 기관(S)을 가열하여 액막을 증발 제거할 수 있다.

[71]

[72] 또한, 도 2에 도시된 바와 같이 기관(S)에 증착 코팅된 그래핀 층에 레이저 빔을 조사할 수 있도록 레이저 조사기(500)가 구비될 수 있으며, 이를 통해 그래핀 층의 균일성을 향상시킬 수 있다.

[73]

즉, 전술한 스프레이 공정을 통해 그래핀 입자(P1)는 초음속 유동 내에서 불규칙한 형태로 기관(S)에 증착하게 되고 그래핀 입자가 구겨지는 형태로 존재할 수 있는데, 이러한 그래핀 입자의 불규칙한 형태와 구겨진 형상을 개선하기 위해 레이저빔과 같은 높은 에너지를 공급할 수 있다. 그래핀은 열에너지를 받게 되면 팽윤과 같이 부피가 팽창하게 되는데, 이러한 그래핀의 특징을 이용하여 레이저빔과 같은 높은 에너지를 그래핀 입자에 공급하여 평평하고 넓은 면적을 갖는 그래핀층을 형성시킬 수 있다.

[74]

[75]

도 3에는 이와 같이 형성된 그래핀 필름의 코팅 상태를 확인하기 위해 현미경으로 확대 촬영한 사진을 도시하였고, 도 4에는 X선 회절분석기를 이용하여 그래핀층을 분석한 테스트 결과를 도시하였으며, 도 5에는 그래핀 필름의 가시광 투과도 및 표면 저항에 대한 테스트 결과를 도시하였다. 즉, 도 3에는 도 1의 장치를 이용하여 그래핀 용액을 저온스프레이를 통하여 코팅한 기관의 일부분을 SEM(Scanning Electron Microscope) 전자 주사 현미경을 이용하여 촬영한 사진이 도시되는데, 도 3의 좌측, 즉 (a)는 종래 방식에 따른 그래핀 코팅의 상태가 도시되고, 도 3의 우측, 즉 (b)에는 본 발명의 방식에 따른 그래핀 코팅 상태가 되고, 도시된 바와 같이 본 발명에 따른 저온 스프레이 코팅 증착 장치에 의하여 증착 결과와 같이 기관의 일면 상에 복수 개의 그래핀 시트가 겹쳐져 밀도 있게 코팅된 상태임을 확인할 수 있다. 또한, 도 4에는 코팅면의 성분을 확인하기 위해서 X-선 회절장치를 이용하여 그래핀의 peaks를 확인하는 선도가 도시되는데, 그래핀의 주요 peak인 결정구조 111방향이 26.6°에서 확인 하였고, 010, 110, 220 방향의 결정구조를 가진 peaks이 43.4°,

46.3°, 54.8°에서 나타나는 것으로 확인함으로써 본 발명의 저온 스프레이를 통한 그래핀 코팅의 경우 그래핀의 특성 자체가 변화하지는 않는다는 것을 확인하였다. 또한, 도 5에는 높은 가시광 투과도와 높은 전기 전도도를 가지고 있는 그래핀을 저온 스프레이로 코팅하였을 때 그래핀 필름의 가시광 투과도 및 표면 저항에 대한 테스트 결과가 도시되는데, 가시광 투과도는 UV-Vis Spectrophotometer를 이용하여 200 ~ 900nm의 영역을 측정하였고, 표면 저항을 측정하기 위해 4 probe를 이용하여 표면 저항 값을 측정하여 소정의 표면 저항을 갖는 영역에 대하여 제품 설계 영역 내의 투과도를 갖는 그래핀을 구비하는 필름 형성이 가능함을 확인하였다.

[76] 도 3 내지 도 5를 통해 알 수 있듯이, 본 발명의 일 실시 예에 따라 저온 스프레이 방식을 통해 코팅된 그래핀 필름은 그 투과도 및 표면 저항 등 그 특성이 매우 우수하여 다양한 분야에 적용될 수 있을 것이다.

[77]

[78] 도 6은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 구성을 개략적으로 도시한 분해 사시도이고, 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 내부 구조를 개략적으로 도시한 단면도이고, 도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐의 용액 주입구 형상을 예시적으로 도시한 도면이다.

[79] 본 발명의 일 실시예에 따른 초음속 분사 노즐(100)은 도 6 및 도 7에 도시된 바와 같이 작동 가스가 유동하도록 내부 공간에 가스 유로(120)가 형성되는 노즐 하우징(110)과, 노즐 하우징(110)에 형성된 가스 유로(120)의 중단부에 직각 방향으로 연통되도록 노즐 하우징(110)에 형성되는 용액 주입구(130)를 포함하여 구성된다. 노즐 하우징(110)은 도 6에 도시된 바와 같이 상부 하우징(111)과 하부 하우징(112)으로 분리 형성되고, 상호 결합하여 내부에 하나의 가스 유로(120)를 형성하도록 구성될 수 있다. 이때, 용액 공급부(300)는 노즐 하우징(110)의 가스 유로(120) 내부로 혼합 용액이 공급되도록 용액 주입구(130)에 연통되게 결합된다.

[80]

[81] 가스 유로(120)는 양단에 유입구(121-1) 및 배출구(123-1)가 형성되고, 중단부에는 유동 단면적이 감소하는 교축부(122)가 형성된다. 유입구(121-1)로부터 교축부(122)까지는 유동 단면적이 감소하는 형태로 유입부(121)가 형성되고, 교축부(122)로부터 배출구(123-1)까지는 유동 단면적이 증가하는 형태로 배출부(123)가 형성된다. 이때, 유입부(121) 내주면이 곡면을 이루도록 형성되며, 유동 단면적 자체는 교축부(122)로 갈수록 감소하되 그 폭은 증가하는 형태로 형성될 수 있다.

[82] 교축부(122)로부터 배출구(123-1)로 향하는 배출부(123) 구간에는 배출구(123-1)로 갈수록 유동 단면적이 증가하는 방향으로 경사지도록 경사면(123-2)이 형성된다. 따라서, 배출부(123) 구간에서는 경사면(123-2) 형태에 의해 상대적으로 가스 유로(120)의 폭이 상대적으로 넓게 형성될 수 있다.

[83]

[84] 용액 주입구(130)는 이러한 경사면(123-2)에 형성되어 가스 유로(120)에 연통되도록 형성될 수 있다. 따라서, 가스 유로(120)를 통해 초음속 속도로 작동 가스가 분사되면, 가스 유로(120) 내부에서 압력 강하 현상이 발생하고, 이에 따라 용액 주입구(130)를 통해 혼합 용액이 가스 유로(120) 내부로 유입되고, 유입된 상태에서 작동 가스와 함께 배출구(123-1)를 통해 미립자 액적 상태로 분사된다.

[85]

이때, 용액 주입구(130)는 도 8의 (a)에 도시된 바와 같이 원형 유로를 갖는 형태로 형성될 수도 있으나, 이 경우 미립자 액적(P)의 확산 범위가 상대적으로 좁고 따라서 특정 영역에만 집중적으로 그래핀 증착 코팅될 수 있다. 이와 달리 도 8의 (b)에 도시된 바와 같이 용액 주입구(130)가 작동 가스의 유동 방향에 대한 직각 방향으로 길게 타원 형태로 경사면(123-2)에 형성되면, 미립자 액적(P)의 확산 범위가 상대적으로 넓어지게 되고, 이에 따라 더욱 넓은 영역으로 미립자 액적(P)이 분사될 수 있으므로, 더 넓은 영역에 그래핀 입자를 증착 코팅시킬 수 있다.

[86]

[87] 이상의 설명은 본 발명의 기술 사상을 예시적으로 설명한 것에 불과한 것으로서, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 본 발명의 본질적인 특성에서 벗어나지 않는 범위에서 다양한 수정 및 변형이 가능할 것이다. 따라서, 본 발명에 개시된 실시예들은 본 발명의 기술 사상을 한정하기 위한 것이 아니라 설명하기 위한 것이고, 이러한 실시예에 의하여 본 발명의 기술 사상의 범위가 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 보호 범위는 아래의 청구범위에 의하여 해석되어야 하며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 기술 사상은 본 발명의 권리범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

[88]

산업상 이용가능성

[89]

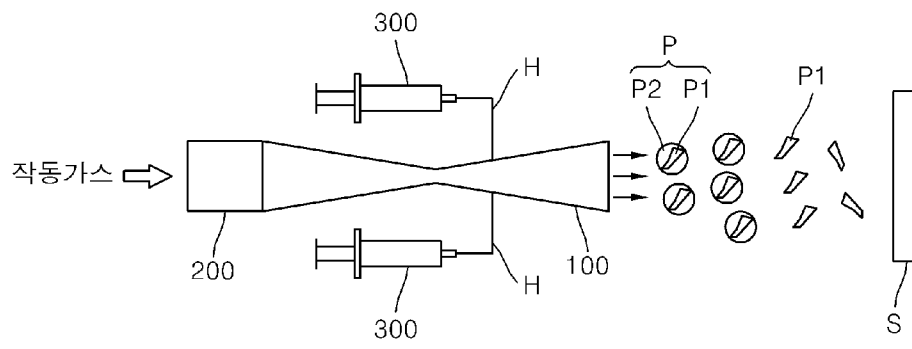
본 발명의 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치는 도전성 기판, 디스플레이 기판 등 그래핀 입자를 포함하는 다양한 재료를 제조함에 사용될 수 있다.

청구범위

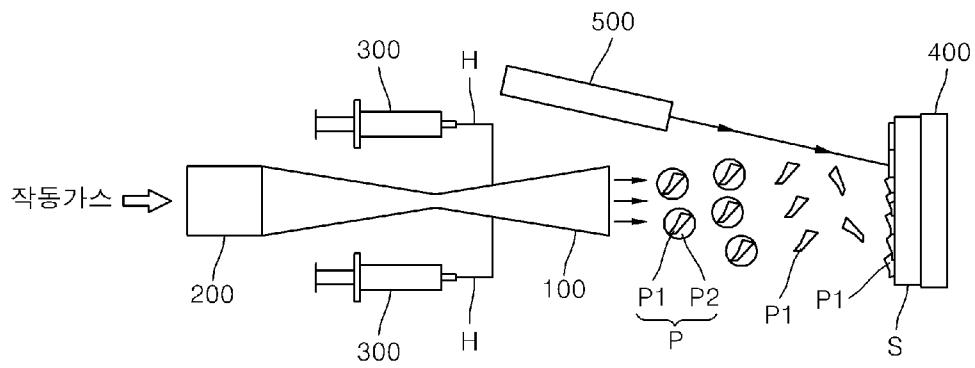
- [청구항 1] 기관을 향해 작동 가스를 초음속 상태로 분사하는 초음속 분사 노즐;
상기 초음속 분사 노즐에 공급되는 작동 가스를 가열하는 히팅부;
및
그래핀 입자와 휘발성 액체가 혼합된 상태의 혼합 용액이 저장되고, 상기 혼합 용액이 상기 초음속 분사 노즐을 통해 상기 작동 가스와 함께 분사되도록 상기 초음속 분사 노즐에 연결되는 용액 공급부를 포함하고, 상기 혼합 용액은 상기 그래핀 입자가 함유된 미립자 액적 상태로 상기 초음속 분사 노즐을 통해 분사되고, 분사되는 과정에서 상기 휘발성 액체가 증발되어 상기 그래핀 입자가 상기 기관에 증착 코팅되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 2] 제 1 항에 있어서,
상기 초음속 분사 노즐은
상기 작동 가스가 유동하도록 내부 공간에 가스 유로가 형성되는 노즐 하우징; 및
상기 노즐 하우징에 형성된 가스 유로의 중단부에 직각 방향으로 연통되도록 상기 노즐 하우징에 형성되는 용액 주입구를 포함하고, 상기 용액 공급부는 상기 가스 유로 내부로 상기 혼합 용액이 공급되도록 상기 용액 주입구에 연통되게 결합되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 3] 제 2 항에 있어서,
상기 가스 유로에 연통되는 상기 용액 주입구의 단면 형상은 상기 작동 가스의 유동 방향에 대한 직각 방향으로 길게 형성되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 4] 제 2 항에 있어서,
상기 가스 유로는 양단에 유입구 및 배출구가 형성되고, 중단부에는 유동 단면적이 감소하는 교축부가 형성되며, 상기 교축부로부터 상기 배출구로 향하는 구간에는 상기 배출구로 갈수록 유동 단면적이 증가하는 방향으로 경사지도록 경사면이 형성되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 5] 제 4 항에 있어서,
상기 용액 주입구는 상기 경사면에 형성되는 것을 특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.

- [청구항 6] 제 5 항에 있어서,
상기 용액 주입구는 상기 경사면에 상기 작동 가스의 유동 방향에
대한 직각 방향으로 길게 형성되는 것을 특징으로 하는 저온
스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 7] 제 1 항에 있어서,
상기 초음속 분사 노즐은 스틸, 스테인리스 스틸 및 텅스텐
카바이드 중 어느 하나의 재질로 형성되는 것을 특징으로 하는
저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 8] 제 1 항에 있어서,
상기 그래핀 입자가 상기 기판에 증착 형성되는 과정에서 상기
기판을 가열할 수 있도록 별도의 가열판이 구비되는 것을
특징으로 하는 저온 스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 9] 제 8 항에 있어서,
상기 가열판은 일면에 상기 기판이 안착될 수 있도록 형성되어
열전도 방식으로 상기 기판을 가열하는 것을 특징으로 하는 저온
스프레이 방식 그래핀 증착 장치.
- [청구항 10] 제 1 항에 있어서,
상기 기판에 증착 코팅된 그래핀층에 레이저빔을 조사할 수
있도록 레이저 조사기가 구비되는 것을 특징으로 하는 저온
스프레이 방식 그래핀 증착 장치.

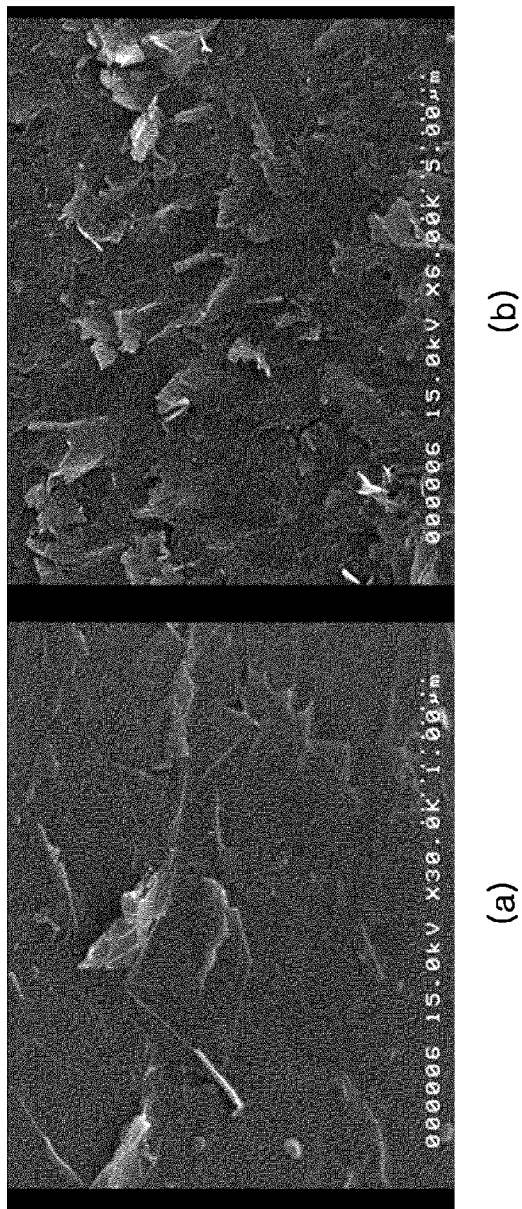
[Fig. 1]



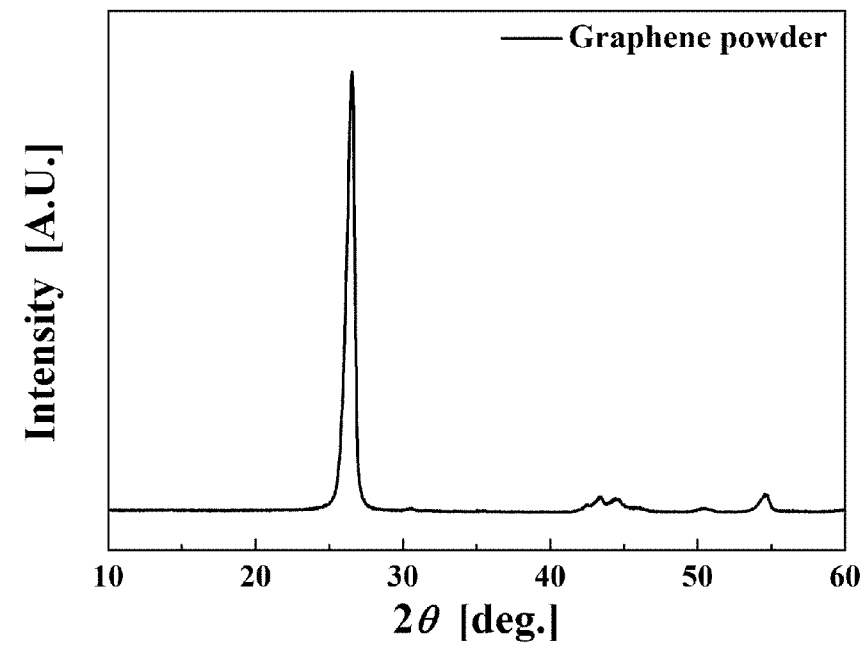
[Fig. 2]



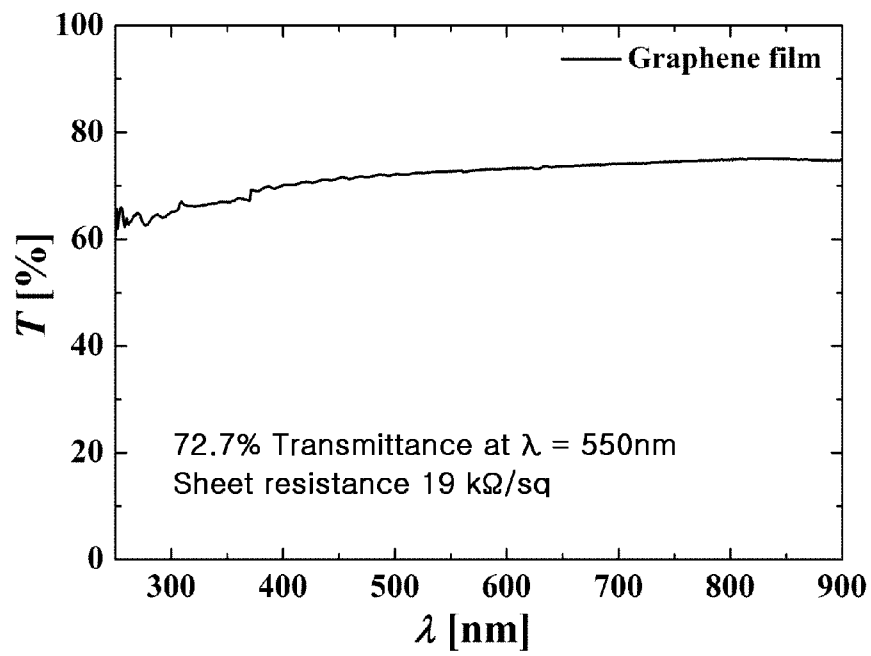
[Fig. 3]



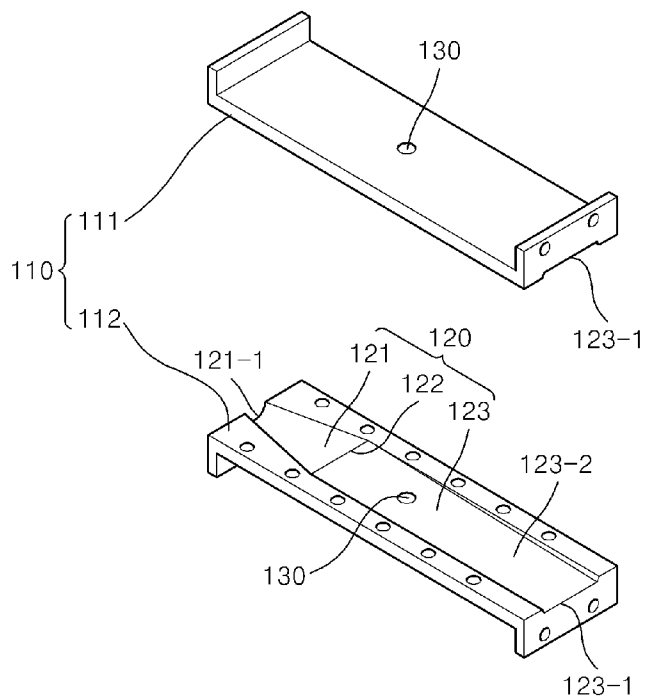
[Fig. 4]



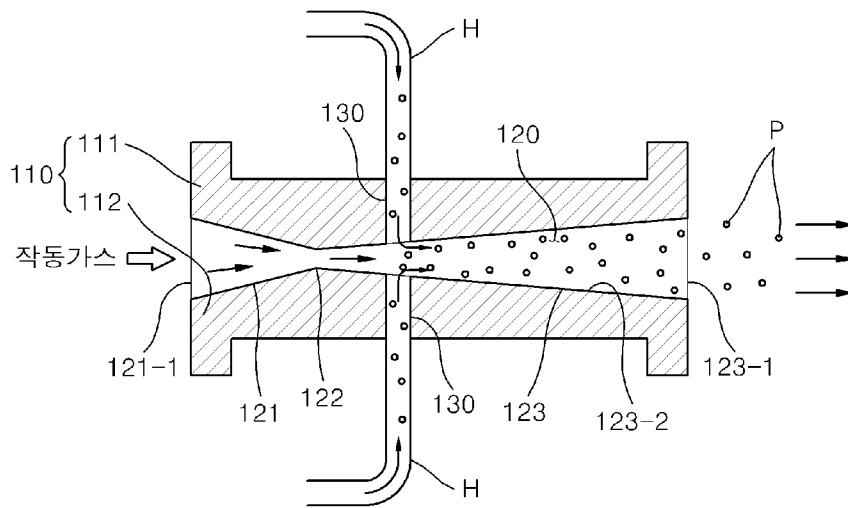
[Fig. 5]



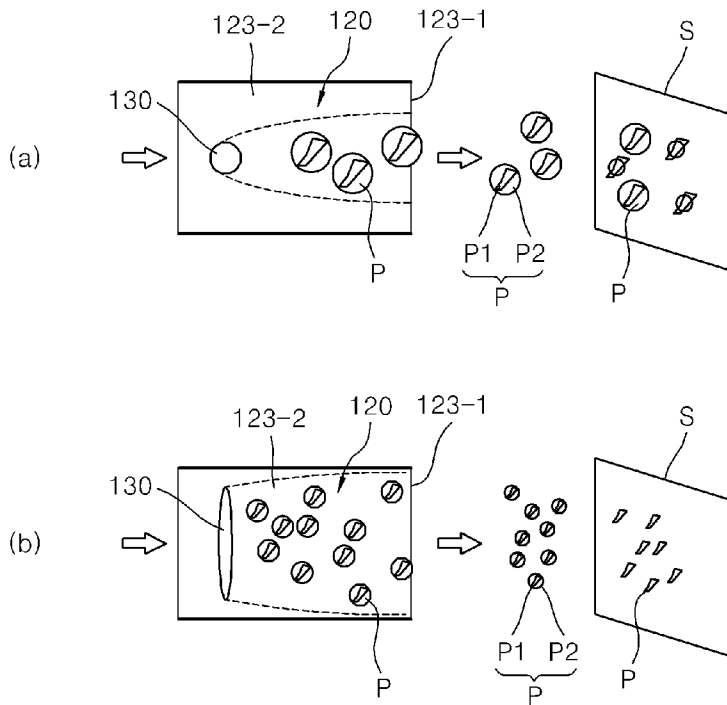
[Fig. 6]



[Fig. 7]



[Fig. 8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2014/000193**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****C23C 4/12(2006.01)i, C23C 4/04(2006.01)i***

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C23C 4/12; B05D 1/06; C25B 11/04; C23C 24/04; B05D 5/00; G02F 1/136; B05D 7/24; H01L 29/786; C23C 24/08; C23C 4/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: substrate, spray, nozzle, low temperature evaporation spray, graphene and heating unit

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 10-2010-0119234 A (FEMVIX) 09 November 2010 See paragraphs [0043], [0058], [0062], [0066]; claims 1, 3, 19; and figures 2, 5, 7.	1-10
Y	CN 102764724 A (GUIZHOU XINTAN HIGH-TECH CO., LTD.) 07 November 2012 See paragraph [0016] and claims 1-2.	1-10
Y	KR 10-2012-0031582 A (HANBAT NATIONAL UNIVERSITY INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION) 04 April 2012 See paragraph [0004].	10
A	WO 2011-087301 A2 (SUNGKYUNKWAN UNIVERSITY FOUNDATION FOR CORPORATE COLLABORATION) 21 July 2011 See claims 1-2.	1-10
A	KR 10-2009-0117574 A (CERECTRON CO., LTD.) 12 November 2009 See claims 1-9 and figures 1-2.	1-10



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 APRIL 2014 (16.04.2014)

Date of mailing of the international search report

17 APRIL 2014 (17.04.2014)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2014/000193

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2010-0119234 A	09/11/2010	KR 10-1065271 B1	20/09/2011
CN 102764724 A	07/11/2012	NONE	
KR 10-2012-0031582 A	04/04/2012	KR 10-1172187 B1	07/08/2012
		WO 2012-043912 A1	05/04/2012
WO 2011-087301 A2	21/07/2011	KR 10-2011-0084110 A	21/07/2011
		KR 10-2014-0010352 A	24/01/2014
		US 2012-0282419 A1	08/11/2012
		WO 2011-087301 A3	01/12/2011
KR 10-2009-0117574 A	12/11/2009	KR 10-1013078 B1	28/01/2011

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C23C 4/12(2006.01)i, C23C 4/04(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C23C 4/12; B05D 1/06; C25B 11/04; C23C 24/04; B05D 5/00; G02F 1/136; B05D 7/24; H01L 29/786; C23C 24/08; C23C 4/04

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 기관, 분사, 노즐, 증착저온 스프레이, 그래핀 및 히팅부

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	KR 10-2010-0119234 A (주식회사 펌빅스) 2010.11.09 문단 [0043],[0058],[0062],[0066]; 청구항 1,3,19; 및 도면 2,5,7 참조.	1-10
Y	CN 102764724 A (GUIZHOU XINTAN HIGH-TECH CO., LTD.) 2012.11.07 문단 [0016] 및 청구항 1-2 참조.	1-10
Y	KR 10-2012-0031582 A (한밭대학교 산학협력단) 2012.04.04 문단 [0004] 참조.	10
A	WO 2011-087301 A2 (성균관대학교 산학협력단) 2011.07.21 청구항 1-2 참조.	1-10
A	KR 10-2009-0117574 A ((주)세렉트론) 2009.11.12 청구항 1-9 및 도면 1-2 참조.	1-10

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일

2014년 04월 16일 (16.04.2014)

국제조사보고서 발송일

2014년 04월 17일 (17.04.2014)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



대한민국 특허청
(302-701) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-472-7140

심사관

황찬윤

전화번호 +82-42-481-3347



국제조사보고서
대응특허에 관한 정보

국제출원번호

PCT/KR2014/000193

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2010-0119234 A	2010/11/09	KR 10-1065271 B1	2011/09/20
CN 102764724 A	2012/11/07	없음	
KR 10-2012-0031582 A	2012/04/04	KR 10-1172187 B1	2012/08/07
		WO 2012-043912 A1	2012/04/05
WO 2011-087301 A2	2011/07/21	KR 10-2011-0084110 A	2011/07/21
		KR 10-2014-0010352 A	2014/01/24
		US 2012-0282419 A1	2012/11/08
		WO 2011-087301 A3	2011/12/01
KR 10-2009-0117574 A	2009/11/12	KR 10-1013078 B1	2011/01/28