(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2016 년 11 월 3 일 (03.11.2016)

WIPO | PCT

(10) 국제공개번호
WO 2016/175498 A1

(51) 국제특허분류:
C01B 31/04 (2006.01)

(21) 국제출원번호: PCT/KR2016/004129

(22) 국제출원일: 2016 년 4 월 20 일 (20.04.2016)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:
10-2015-0059615 2015 년 4 월 28 일 (28.04.2015) KR

(71) 출원인: **성균관대학교산학협력단 (RESEARCH & BUSINESS FOUNDATION SUNGKYUNKWAN UNIVERSITY)** [KR/KR]; 16419 경기도 수원시 장안구 서부로 2066, Gyeonggi-do (KR).

(72) 발명자: **이영관 (LEE, Youngkwan)**; 03902 서울시 서초구 방배로 14, 5 동 405 호, Seoul (KR). **조미숙 (CHO, Mi Suk)**; 16419 경기도 수원시 장안구 서부로 2066 성균관대학교자연과학캠퍼스 25312 호, Gyeonggi-do (KR). **이상하 (LEE, Sang Ha)**; 16008 경기도 의왕시 덕장로 76, 203 동 704 호, Gyeonggi-do (KR). **정유정 (JUNG, Yoo Jung)**; 08778 서울시 관악구 신림로 54 가길 33, 301 호, Seoul (KR).

(74) 대리인: **남건필 (NAM, Gunpil)** 등; 07299 서울시 영등포구 경인로 775, 에이스하이테크시티 2 동 508 호(문래동 3 가), 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, 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.

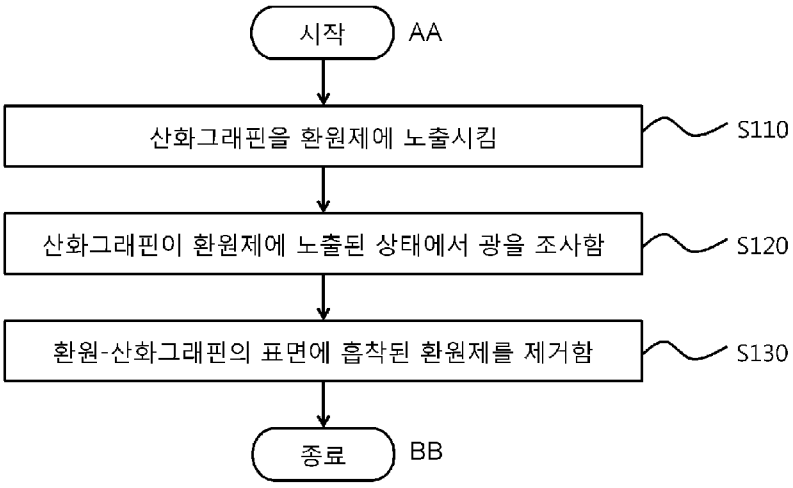
(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM,

[다음 쪽 계속]

(54) **Title**: METHOD FOR PREPARING REDUCED-GRAPHENE OXIDE

(54) **발명의 명칭** : 환원-산화그래핀의 제조 방법

[도1]



S110 ... Expose graphene oxide to reducing agent
S120 ... Irradiate light while graphene oxide is exposed to reducing agent
S130 ... Remove reducing agent adsorbed on surface of reduced-graphene oxide
AA ... Start
BB ... End

(57) **Abstract**: A method for preparing reduced-graphene oxide of the present invention comprises the step of: exposing graphene oxide to a reducing agent; and irradiating light to the graphene oxide exposed to the reducing agent to reduce graphene oxide.

(57) **요약서**: 본 발명의 환원-산화그래핀의 제조 방법은 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계 및 환원제에 노출된 산화그래핀에 광을 조사하여 산화그래핀을 환원시키는 단계를 포함한다.

WO 2016/175498 A1

KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, 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))

명세서

발명의 명칭: 환원-산화그래핀의 제조 방법

기술분야

[1] 본 발명은 환원-산화그래핀의 제조 방법에 관한 것으로, 보다 구체적으로는 공정 제어가 용이하고, 제조된 환원-산화그래핀의 환원정도를 조절할 수 있는 환원-산화그래핀의 제조 방법에 관한 것이다.

배경기술

[2] 그래핀(graphene)은 탄소 원자가 6각형 모양으로 연결된 판상의 2차원 구조의 물질로서, 투명도 및 전도성이 우수하여 초고속 반도체, 투명전극, 고효율 태양전지, 슈퍼커패시터 등 다양한 분야에 이용되고 있다.

[3] 일반적으로 그래핀은 그래핀 옥사이드(graphene oxide, GO) 상태로 존재하기 때문에 이를 환원시키는 연구, 특히 대량으로 환원시키는 방법에 대한 연구가 지속적으로 진행되고 있다. 그래핀 옥사이드는 열적 또는 화학적으로 환원시키는데, 열적 환원 방법에서는 600℃ 이상의 고온 공정이 수반되며 반응시간도 4 시간 이상으로 긴 편이다. 또한, 화학적 환원 방법에서는, 습식 공정으로서 용액에서 수행하는 경우에 환원 후에 분리, 세척 등의 추가 공정이 필수적으로 수반된다. 건식 공정으로 환원제를 기체 상태에서 적용하는 경우에는 12 시간 이상의 긴 반응시간을 요구한다.

[4] 최근에는, 광을 이용한 광환원법이 개발된 바 있으나, 단시간동안 강력한 에너지를 조사하므로, 내열성 기판에 코팅한 필름에만 적용이 가능한 한계가 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

[5] 본 발명의 일 목적은 필름 형태나 파우더 형태 등 산화그래핀의 형태에 상관없이 공정 제어가 용이하고, 환원정도를 조절할 수 있는 환원-산화그래핀의 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제 해결 수단

[6] 본 발명의 일 목적을 위한 환원-산화그래핀의 제조 방법은 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계 및 환원제에 노출된 산화그래핀에 광을 조사하여 산화그래핀을 환원시키는 단계를 포함한다.

[7] 일 실시예에서, 산화그래핀은 액상의 환원제의 스핀코팅 또는 스프레이 코팅에 의해 환원제에 노출될 수 있다.

[8] 일 실시예에서, 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계는 고상 또는 액상의 환원제를 반응기에 배치시킨 상태에서 온도를 상승시켜 환원제를 기상으로 상변화시키는 단계와 기상의 환원제 조건의 반응기에 산화그래핀을 배치시키는 단계를 포함할 수 있다.

[9] 일 실시예에서, 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계는 기상의 환원제를 반응기에 주입시키는 단계와 기상의 환원제 조건의 반응기에 산화그래핀을 배치시키는 단계를 포함할 수 있다.

[10] 일 실시예에서, 산화그래핀은 베이스 기재 상에 코팅된 필름 형태이거나, 파우더 형태일 수 있다.

[11] 일 실시예에서, 상기 산화그래핀을 환원시키는 단계는 자외선, 가시광선 또는 X-선을 이용할 수 있다.

[12] 일 실시예에서, 상기 산화그래핀을 환원시키는 단계는 레이저 또는 인텐스 펄스광(intense pulse light) 형태일 수 있다.

[13] 일 실시예에서, 산화그래핀을 환원시키는 단계에서 10 초 이하의 시간동안 광을 조사하여 500 Ω/□(ohm per square) 이하의 표면 저항값을 갖는 환원-산화그래핀이 형성될 수 있다.

[14] 일 실시예에서, 상기 제조 방법은 산화그래핀을 환원시킨 후에 환원-산화그래핀의 표면에 흡착된 환원제를 제거하는 단계를 더 포함할 수 있다.

발명의 효과

[15] 본 발명의 환원-산화그래핀의 제조 방법에 따르면, 단시간에 에너지의 소모 없이 산화그래핀을 용이하게 필름 형태의 환원-산화그래핀으로 제조할 수 있다. 필름 형태나 파우더 형태 등 산화그래핀의 형태에 상관없이 적용할 수 있으며, 공정 제어가 용이하여 환원정도를 쉽게 조절할 수 있다. 짧은 반응시간으로, 저비용으로 환원-산화그래핀을 제조할 수 있어 경제적이다.

도면의 간단한 설명

[16] 도 1은 본 발명에 따른 환원-산화그래핀의 제조 방법을 설명하기 위한 순서도이다.

[17] 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 환원-산화그래핀 샘플과, 광환원법에 따라 제조된 비교 샘플의 XPS 분석 결과를 나타낸 도면이다.

[18] 도 3은 본 발명의 광조사 단계에서의 광량의 변화에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다.

[19] 도 4는 본 발명의 광조사 단계에서의 광조사 횟수 및 광량에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다.

[20] 도 5는 환원-산화그래핀의 제조 방법별 시간에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다.

발명의 실시를 위한 형태

[21] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본 발명의 실시예에 대해 상세히 설명한다. 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 특정 실시예들을 도면에 예시하고 본문에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명을 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로

이해되어야 한다. 각 도면을 설명하면서 유사한 참조부호를 유사한 구성요소에 대해 사용하였다.

[22] 본 출원에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시 예를 설명하기 위해 사용된 것으로서 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[23] 다르게 정의되지 않는 한, 기술적이거나 과학적인 용어를 포함해서 여기서 사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가지고 있다. 일반적으로 사용되는 사전에 정의되어 있는 것과 같은 용어들은 관련 기술의 문맥 상 가지는 의미와 일치하는 의미를 가지는 것으로 해석되어야 하며, 본 출원에서 명백하게 정의하지 않는 한, 이상적이거나 과도하게 형식적인 의미로 해석되지 않는다.

[24]

[25] 도 1은 본 발명에 따른 환원-산화그래핀의 제조 방법을 설명하기 위한 순서도이다.

[26] 도 1을 참조하면, 산화그래핀(graphene oxide)을 환원제에 노출시킨다(단계 S110).

[27] 산화그래핀은 필름 상태이거나 파우더 상태일 수 있다. 산화그래핀이 필름 상태인 경우, 산화그래핀은 금속이나 유리, 고분자 필름을 포함하는 베이스 기재 상에 코팅된 상태를 의미한다. 베이스 기재를 구성하는 금속은 구리일 수 있다. 상기 고분자 필름으로서는 PET 필름을 들 수 있다.

[28] 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 공정은, 환원제가 액상인 경우 스핀코팅이나 스프레이 코팅을 이용하여 환원제에 산화그래핀을 노출시킬 수 있다.

[29] 이와 달리, 환원제는 기상으로 산화그래핀으로 제공될 수 있는데, 기상의 환원제 분위기의 반응기 내에 산화그래핀을 배치시키고 이 상태에서 밀봉할 수 있다. 예를 들어, 고상이나 액상의 환원제는 반응기 내부에 배치시킨 후에 반응기의 온도를 상승시켜 기상으로 상 변화시켜 반응기 내부를 환원제 분위기로 만들 수 있다. 이와 달리, 기상의 환원제를 반응기에 주입시킴으로써 반응기를 환원제 분위기로 만들 수 있다.

[30] 이어서, 산화그래핀이 환원제에 노출된 상태에서 광을 조사하여(단계 S120), 산화그래핀을 환원시킴으로써 환원-산화그래핀(reduced-graphene oxide)가 제조된다.

[31] 광조사 공정에서의 인가되는 전압, 광조사 시간 등을 조절함으로써 면적당 제공되는 에너지량을 조절할 수 있고, 에너지량을 조절하여 제조되는

환원-산화그래핀의 표면 저항값을 최적화시킬 수 있다.

[32] 광조사 공정은 자외선, 가시광선 또는 X-선을 이용할 수 있다. 광조사 공정에서, 광의 형태는 레이저 또는 인텐스 펄스광(intense pulse light)일 수 있다.

[33] 본 발명에서는, 환원제 분위기 하에서, 광조사 공정이 수행되기 때문에 10 초 이하의 시간동안 광을 조사하여 500 Ω/□(ohm per square) 이하의 표면 저항값을 갖는 환원-산화그래핀을 형성할 수 있다.

[34] 추가적으로, 제조된 환원-산화그래핀의 표면에는 환원제가 흡착되어 있을 수 있으므로, 흡착된 환원제를 제거하는 공정을 더 수행한다(단계 S130). 환원제의 제거 공정은 진공 상태에서 수행될 수 있다.

[35] 상기에서 설명한 바에 따르면, 환원제 분위기 하에서, 광을 조사하여 산화그래핀을 환원시켜 간단한 공정으로 환원-산화그래핀을 제조할 수 있다. 광조사 공정에서 광량이나 광조사 시간 등만을 조절함으로써 환원-산화그래핀의 환원 정도를 쉽게 조절할 수 있으며, 필름 형태나 파우더 형태 등 산화그래핀의 형태에 상관없이 적용할 수 있다. 이와 같이, 단시간에 에너지의 소모 없이 산화그래핀을 용이하게 필름 형태의 환원-산화그래핀으로 제조할 수 있어, 저비용으로 환원-산화그래핀을 제조할 수 있어 경제적이다.

[36] 이하에서는, 본 발명의 환원-산화그래핀의 제조 방법의 일례에 따라 환원-산화그래핀을 제조하고, 제조된 환원-산화그래핀 샘플과 다른 방법으로 제조된 비교 샘플들의 특성을 평가하여 비교한 바를 도 2 내지 도 5를 참조하여 구체적으로 설명한다.

[37] **<u>샘플 1 및 비교 샘플 1의 제조</u>**

[38] 본 발명의 일례로서, 반응기에 환원제를 넣고 약 60℃로 가열하여 환원제를 기체 상태로 만들었다. 환원제 분위기의 반응기에, PET 필름 상에 형성된 산화그래핀을 넣고 밀봉한 후, 밀봉한 반응기에 광을 조사하였다. 이때, 제논 램프(xenon lamp)를 이용하였고, 반응기에서 제조된 환원-산화그래핀을 꺼내어 진공 상태에서 그 표면에 흡착된 환원제를 제거하여, 샘플 1(PC-GO)을 준비하였다.

[39] 이와의 비교를 위해, 미국공개특허 2014-0284718(2014년 9월 25일 공개)에서 개시하고 있는 실시예 1에 따라 환원-산화그래핀을 제조하여, 비교 샘플 1(P-GO)로 준비하였다.

[40]

[41] **<u>XPS 분석 결과</u>**

[42] 산화그래핀(GO), 비교 샘플 1(P-GO) 및 샘플 1(PC-GO) 각각에 대해서 XPS(X-ray photoelectron spectroscopy) 분석을 수행하였고, 그 결과를 도 2에 나타낸다. 또한, 산화그래핀(GO), 비교 샘플 1(P-GO) 및 샘플 1(PC-GO) 각각에서의 결합의 상대적 비율을 구하기 위해서, 탄소-탄소결합(C-C)과 탄소-산소 결합(C-O, C=O, CO(O))을 나타내는 XPS 피크의 넓이를 계산하였고, 그 결과 또한 도 2에 나타낸다.

[43] 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 환원-산화그래핀 샘플과, 광환원법에 따라 제조된 비교 샘플의 XPS 분석 결과를 나타낸 도면이다. 도 2에서, (a)는 산화그래핀의 XPS 그래프이고, (b)는 비교 샘플 1의 XPS 그래프이며, (c)는 샘플 1의 XPS 그래프이고, (d)는 XPS 피크의 넓이의 막대그래프이다.

[44] 도 2의 (a), (b) 및 (c)를 참조하면, 광환원법을 이용한 비교 샘플 1(P-GO)과 본 발명의 방법을 이용한 샘플 1(PC-GO)에서는 산화그래핀(GO)에 비해서 탄소-탄소 결합의 피크의 세기는 강해지는 반면, 탄소-산소 결합의 피크의 세기는 약해지는 것을 알 수 있다. 특히, 샘플 1(PC-GO)에서의 탄소-탄소 결합의 피크의 세기가, 비교 샘플 1(P-GO)의 탄소-탄소 결합의 피크의 세기보다 더 강한 것을 알 수 있다.

[45] 도 2의 (d)를 참조하면, 샘플 1(PC-GO)에서의 탄소-산소 결합의 비율은 탄소-탄소 결합에 비해 무시할만한 수준임을 확인할 수 있다.

[46]

[47] **광량에 따른 표면 저항값 변화**

[48] 샘플 1을 제조하는 방법과 실질적으로 동일한 방법을 수행하되, 광량을 변화시켜 환원-산화그래핀 샘플들을 제조하고, 각각에 대한 표면 저항값을 4 프로브법(4 probe method)을 이용하여 측정하였다. 그 결과를 표 3에 나타낸다.

[49] 도 3은 본 발명의 광조사 단계에서의 광량의 변화에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다. 도 3에서, x축은 광량(에너지, 단위 J/square(J/sqr))을 나타내고, y축은 표면 저항(sheet resistance, Ω/□(ohm per square))를 나타낸다.

[50] 도 3을 참조하면, 광량이 증가할수록 표면 저항값이 감소하는 경향을 나타냄을 알 수 있다. 즉, 광량이 증가할수록 산화그래핀의 환원 정도가 증가하여 표면 저항값이 낮게 나타나는 것을 알 수 있다. 다만, 약 4.5 J/sqr 이후에서는 다시 표면 저항값이 증가하는 것을 볼 수 있는데, 이는 샘플의 제조시에 PET 필름 상에 형성된 산화그래핀을 이용함에 따라 광조사 공정에서 PET 필름이 분해됨에 따라 나타나는 결과로 볼 수 있다.

[51]

[52] **광조사 횟수에 따른 표면 저항값 변화**

[53] 샘플 1을 제조하는 방법과 실질적으로 동일한 방법을 수행하되, 광조사 횟수와 광량을 변화시켜 환원-산화그래핀 샘플들을 제조하고, 각각에 대한 표면 저항값을 4 프로브법을 이용하여 측정하였다. 그 결과를 도 4에 나타낸다.

[54] 도 4는 본 발명의 광조사 단계에서의 광조사 횟수 및 광량에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다. 도 4에서, x축이 광조사 횟수를 나타내며, y축이 표면 저항값을 나타낸다.

[55] 도 4를 참조하면, 일정 구간 내에서 조사한 광량이 강할수록 또한 광조사 횟수가 증가함에 따라 표면 저항값은 감소함을 알 수 있다. 이는 환원-산화그래핀의 환원 정도가 증가함에 따른 결과로 유추할 수 있다. 다만, 각

광량에서 광조사 횟수가 일정값 이상이 되면 표면 저항값이 증가하는 경향을 나타내는 것을 알 수 있는데, 이는 샘플의 제조시에 PET 필름 상에 형성된 산화그래핀을 이용함에 따라 광조사 공정에서 PET 필름이 분해됨에 따라 나타나는 결과로 볼 수 있다.

[56]

[57] **광조사 시간에 따른 표면 저항값 변화**

[58] 샘플 1을 제조하는 방법과 실질적으로 동일한 방법을 수행하되, 광조사 시간을 변화시켜 환원-산화그래핀 샘플들을 제조하고, 각각에 대한 표면 저항값을 4 프로브법을 이용하여 측정하였다. 그 결과를 도 5에 나타낸다.

[59] 도 5는 환원-산화그래핀의 제조 방법별 시간에 따른 표면 저항 특성을 나타낸 그래프이다.

[60] 도 5에서, "photo-chemical"이 본 발명의 제조 방법에 따른 것이고, 동일한 실험을 4번 반복한 것이며, "gas phase chemical"은 종래의 기상 화학법을 이용하여 제조한 경우의 그래프를 나타낸다.

[61] 도 5를 참조하면, 본 발명의 제조 방법에 따르면, 약 1초 수준의 광조사 시간만으로도 표면 저항값이 500 Ω/□(ohm per square)인 환원-산화그래핀이 제조되는 반면(4번의 실험 모두 동일한 결과), 기상 화학법을 이용한 경우에는 60분이 되어야 1500Ω/□ 수준에 도달하고, 적어도 90분 이상이 되어야 표면 저항값이 1000 Ω/□와 유사한 수준이 됨을 알 수 있다.

[62]

[63] 상기에서는 본 발명의 바람직한 실시예를 참조하여 설명하였지만, 해당 기술 분야의 숙련된 당업자는 하기의 특허 청구 범위에 기재된 본 발명의 사상 및 영역으로부터 벗어나지 않는 범위 내에서 본 발명을 다양하게 수정 및 변경시킬 수 있음을 이해할 수 있을 것이다.

청구범위

[청구항 1] 산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계; 및
환원제에 노출된 산화그래핀에 광을 조사하여 산화그래핀을 환원시키는 단계를 포함하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 2] 제1항에 있어서,
산화그래핀은
액상의 환원제의 스핀코팅 또는 스프레이 코팅에 의해 환원제에 노출되는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 3] 제1항에 있어서,
산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계는
고상 또는 액상의 환원제를 반응기에 배치시킨 상태에서 온도를 상승시켜 환원제를 기상으로 상변화시키는 단계; 및
기상의 환원제 조건의 반응기에 산화그래핀을 배치시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 4] 제1항에 있어서,
산화그래핀을 환원제에 노출시키는 단계는
기상의 환원제를 반응기에 주입시키는 단계; 및
기상의 환원제 조건의 반응기에 산화그래핀을 배치시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 5] 제1항에 있어서,
산화그래핀은
베이스 기재 상에 코팅된 필름 형태이거나, 파우더 형태인 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

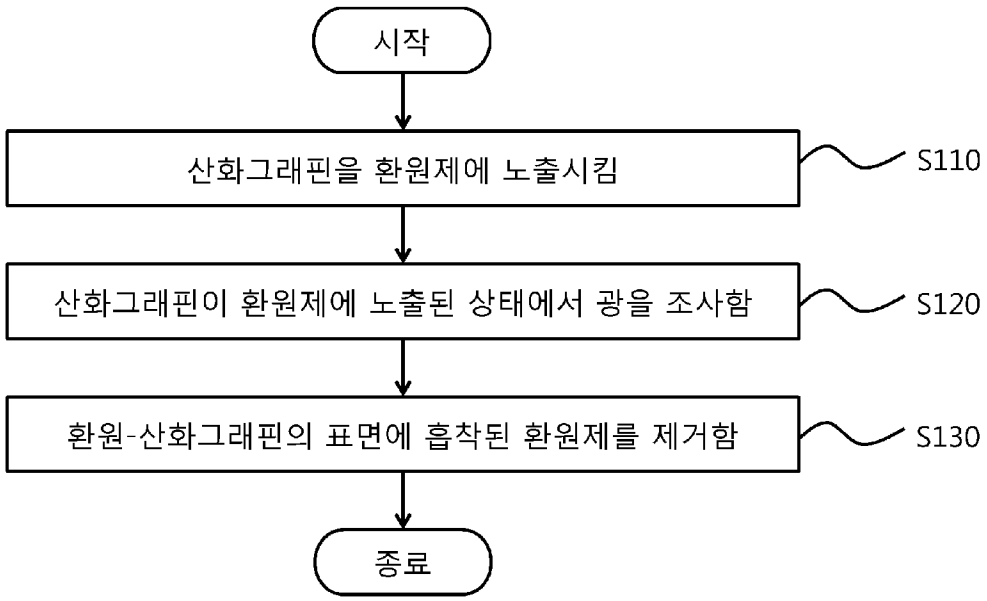
[청구항 6] 제1항에 있어서,
상기 산화그래핀을 환원시키는 단계는
자외선, 가시광선 또는 X-선을 이용하는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 7] 제1항에 있어서,
상기 산화그래핀을 환원시키는 단계는
레이저 또는 인텐스 펄스광(intense pulse light) 형태인 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

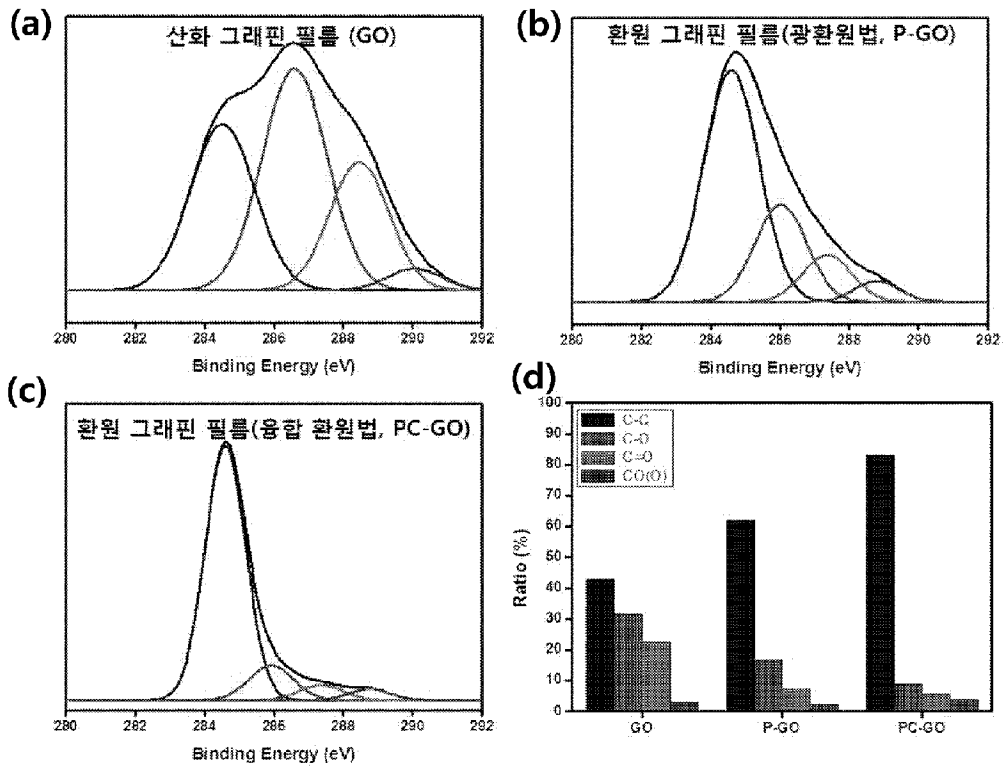
[청구항 8] 제1항에 있어서,
산화그래핀을 환원시키는 단계에서
10 초 이하의 시간동안 광을 조사하여 500 Ω/□(ohm per square) 이하의 표면 저항값을 갖는 환원-산화그래핀이 형성되는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

[청구항 9] 제1항에 있어서,
산화그래핀을 환원시킨 후에 환원-산화그래핀의 표면에 흡착된 환원제를 제거하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는,
환원-산화그래핀의 제조 방법.

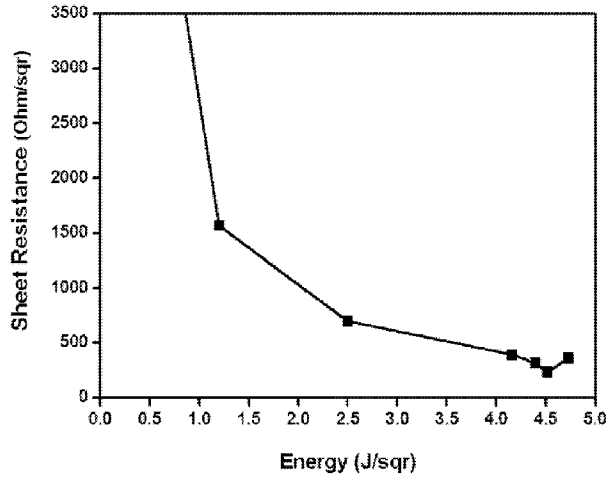
[도1]


시작
산화그래핀을 환원제에 노출시킴
S110
산화그래핀이 환원제에 노출된 상태에서 광을 조사함
S120
환원-산화그래핀의 표면에 흡착된 환원제를 제거함
S130
종료

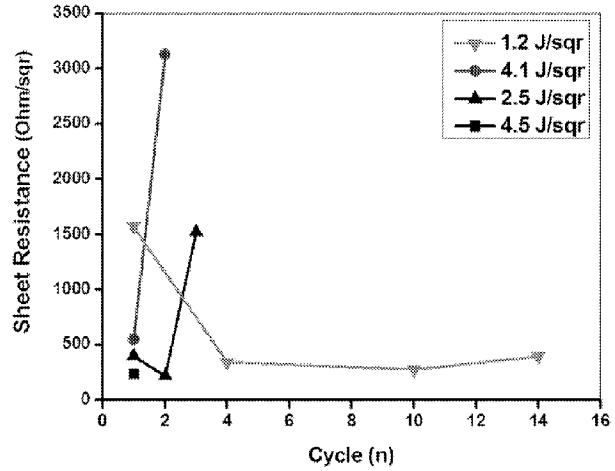
[도2]


(a)
산화 그래핀 필름 (GO)
(b)
환원 그래핀 필름(광환원법, P-GO)
(c)
환원 그래핀 필름(융합 환원법, PC-GO)
(d)
Binding Energy (eV)
Ratio (%)
GO
P-GO
PC-GO

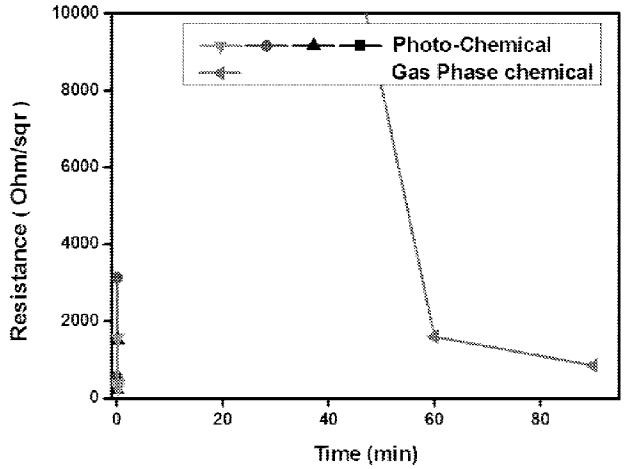
[도3]


Sheet Resistance (Ohm/sqr)
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
0
0.0 0.5 1.0 1.5 2.0 2.5 3.0 3.5 4.0 4.5 5.0
Energy (J/sqr)

[도4]


Sheet Resistance (Ohm/sqr)
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
0
0 2 4 6 8 10 12 14 16
Cycle (n)
1.2 J/sqr
4.1 J/sqr
2.5 J/sqr
4.5 J/sqr

[도5]


Resistance (Ohm/sqr)
10000
8000
6000
4000
2000
0
0 20 40 60 80
Time (min)
Photo-Chemical
Gas Phase chemical

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/KR2016/004129

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 31/04(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)

C01B 31/04; H01M 8/02; B01J 19/24; C01B 31/02; H01B 1/04; B01J 19/08

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: reduction-oxidation graphene, graphene oxide, reducing agent, UV irradiation, reduction

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	SOME, Surajit et al., "Fast Synthesis of High-Quality Reduced Graphene Oxide at Room Temperature under Light Exposure," Nanoscale, 2014, vol. 6, no. 19, pages 11322-11327 See abstract; page 11323, left column, lines 46-48; page 11323, right column, lines 24-28; and page 11326, right column, lines 47-48.	1,2,5-9
Y		3,4
Y	KR 10-2013-0131767 A (LG ELECTRONICS INC.) 04 December 2013 See paragraphs [0048]-[0053]; claim 1; and figure 4.	3
Y	KR 10-2013-0055111 A (LG DISPLAY CO., LTD.) 28 May 2013 See claims 1 and 5.	4
A	KR 10-2015-0020154 A (IUCF-HYU (INDUSTRY-UNIVERSITY COOPERATION FOUNDATION HANYANG UNIVERSITY)) 25 February 2015 See abstract; and claims 1-6.	1-9
A	KR 10-2014-0081584 A (POSCO) 01 July 2014 See abstract; and claims 1-8.	1-9
A	KR 10-2014-0093930 A (UNIVERSITY OF WOLLONGONG) 29 July 2014 See abstract; and claims 1-21.	1-9

☐ 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	Date of mailing of the international search report
18 JULY 2016 (18.07.2016)	**19 JULY 2016 (19.07.2016)**
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.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/KR2016/004129

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2013-0131767 A	04/12/2013	NONE	
KR 10-2013-0055111 A	28/05/2013	NONE	
KR 10-2015-0020154 A	25/02/2015	KR 10-2014-0070329 A	10/06/2014
KR 10-2014-0081584 A	01/07/2014	KR 10-1449187 B1	08/10/2014
KR 10-2014-0093930 A	29/07/2014	CN 104039695 A WO 2013-040636 A1	10/09/2014 28/03/2013

국제조사보고서

국제출원번호
PCT/KR2016/004129

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C01B 31/04(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)
C01B 31/04; H01M 8/02; B01J 19/24; C01B 31/02; H01B 1/04; B01J 19/08

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: 환원-산화그래핀, 산화그래핀, 환원제, 광조사, 환원

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	SOME, SURAJIT 등, "Fast synthesis of high-quality reduced graphene oxide at room temperature under light exposure," Nanoscale, 2014년, 6권, 19호, 페이지 11322-11327 요약; 페이지 11323, 왼쪽 컬럼, 라인 46-48; 페이지 11323, 오른쪽 컬럼, 라인 24-28; 및 페이지 11326, 오른쪽 컬럼, 라인 47-48 참조.	1,2,5-9
Y		3,4
Y	KR 10-2013-0131767 A (엘지전자 주식회사) 2013.12.04 단락 [0048]-[0053]; 청구항 1; 및 도면 4 참조.	3
Y	KR 10-2013-0055111 A (엘지디스플레이 주식회사) 2013.05.28 청구항 1 및 5 참조.	4
A	KR 10-2015-0020154 A (한양대학교 산학협력단) 2015.02.25 요약; 및 청구항 1-6 참조.	1-9
A	KR 10-2014-0081584 A (주식회사 포스코) 2014.07.01 요약; 및 청구항 1-8 참조.	1-9
A	KR 10-2014-0093930 A (유니버시티 오브 울롱공) 2014.07.29 요약; 및 청구항 1-21 참조.	1-9

☐ 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

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

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

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

"P" 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

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

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

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

"&" 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일	국제조사보고서 발송일
2016년 07월 18일 (18.07.2016)	2016년 07월 19일 (19.07.2016)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)
팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관
조한솔
전화번호 +82-42-481-5580

국제조사보고서
대응특허에 관한 정보

국제출원번호
PCT/KR2016/004129

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2013-0131767 A	2013/12/04	없음	
KR 10-2013-0055111 A	2013/05/28	없음	
KR 10-2015-0020154 A	2015/02/25	KR 10-2014-0070329 A	2014/06/10
KR 10-2014-0081584 A	2014/07/01	KR 10-1449187 B1	2014/10/08
KR 10-2014-0093930 A	2014/07/29	CN 104039695 A WO 2013-040636 A1	2014/09/10 2013/03/28