(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년08월08일
(11) 등록번호 10-1428926
(24) 등록일자 2014년08월04일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01L 21/20 (2006.01) *H01L 21/02* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2013-0063268
(22) 출원일자 2013년06월03일
심사청구일자 2013년06월03일
(56) 선행기술조사문헌
KR1020130083864 A
KR1020130050171 A
JP2004222821 A
KR1020120083864 A

(73) 특허권자
고려대학교 산학협력단
서울특별시 성북구 안암로 145, 고려대학교 (안암동5가)
(72) 발명자
김규태
경기도 안양시 동안구 부림로 13 꿈마을현대아파트 606동 603호
김웅연
서울특별시 성북구 안암로 145 고려대학교안암캠퍼스(자연계) 공학관 240호
(74) 대리인
이동건

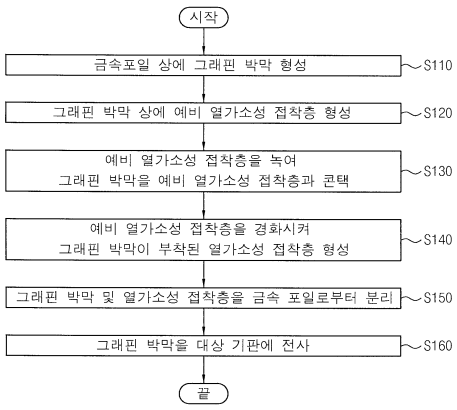
전체 청구항 수 : 총 5 항 심사관 : 강병섭

(54) 발명의 명칭 **그래핀 박막의 전사 방법**

(57) 요 약

그래핀 박막의 전사 방법에 있어서, 금속 포일 상에 그래핀 박막을 형성하고, 상기 그래핀 박막 상에 예비 열가소성 접착층를 형성한다. 이후, 상기 예비 열가소성 접착층를 녹여 상기 그래핀 박막을 상기 예비 열가소성 접착층에 콘택시키고, 상기 예비 열가소성 접착층를 경화시켜 상기 그래핀 박막이 부착된 열가소성 접착층을 형성한다. 이후, 상기 그래핀 박막 및 상기 열가소성 접착층을 상기 금속 포일로부터 물리적으로 분리시키고, 상기 그래핀 박막을 대상 기판에 전사시킨다.

대 표 도 - 도1



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1345171237
부처명	교육과학기술부
연구사업명	첨단융합기술개발
연구과제명	유무기 나노재료의 복합체 소자 구현기술 개발
기 여 율	1/1
주관기관	고려대학교
연구기간	2012.07.01 ~ 2013.06.30

특허청구의 범위

청구항 1

금속 포일 상에 그래핀 박막을 형성하는 단계;

상기 그래핀 박막 상에 예비 열가소성 접착층를 형성시키는 단계;

상기 예비 열가소성 접착층를 녹여 상기 그래핀 박막을 상기 예비 열가소성 접착층에 콘택시키는 단계;

상기 예비 열가소성 접착층를 고화시켜 상기 그래핀 박막이 부착된 열가소성 접착층을 형성하는 단계;

상기 그래핀 박막 및 상기 열가소성 접착층을 상기 금속 포일로부터 물리적으로 분리시키는 단계; 및

상기 그래핀 박막을 대상 기판에 전사시키는 단계를 포함하는 그래핀 박막의 전사 방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 예비 열가소성 접착층는

65.0 내지 85.0 중량%의 프탈산 무산물; 및

15.0 내지 25.0 중량%의 에틸렌 글리콜을 포함하는 것을 특징으로 하는 그래핀 박막의 전사 방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 상기 예비 열가소성 접착층을 이루는 물질은 100 내지 120° C 의 녹는점을 갖는 것을 특징으로 하는 그래핀 박막의 전사 방법.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 열가소성 접착층을 용제를 이용하여 제거하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 그래핀 박막의 전사 방법.

청구항 5

제4항에 있어서, 상기 용제는 아세톤 용액을 포함하는 것을 특징으로 하는 그래핀 박막의 전사 방법.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 그래핀 박막 전사 방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 그래핀 박막을 특정 막에 전사시키는 그래핀 박막 전사 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 우수한 전기전도도를 가지는 그래핀에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히, 그래핀은 주어진 두께의 그래핀의 결정 방향성에 따라서 전기적 특성이 변화하므로 사용자가 선택 방향으로의 전기적 특성을 발현시킬 수 있으므로 소자를 쉽게 설계할 수 있다는 장점이 있다. 이러한 그래핀의 특징은 향후 탄소계 전기 소자 또는 탄소계 전자기 소자 등에 매우 효과적으로 이용될 수 있다.

[0003] 한편, 화학기상증착법을 활용하여 제조된 그래핀의 특성이 가장 우수하고 대량 생산이 가능하다는 장점을 지니고 있다. 하지만, 화학기상증착법을 이용할 경우 전이금속을 촉매층으로 이용하기 때문에 전이금속 상부에 성장된 그래핀을 원하는 기판으로 전사하는 공정이 필요하다. 이와 같이 그래핀은 일반적으로 금속 포일을 이용하여 대면적 합성이 이루어지며, 합성된 그래핀을 전자기기로의 적용하기 위해서는 그래핀을 전자 기기의 전극기판에 전사시키는 공정이 요구된다.

[0004] 현재 일반적인 대면적 그래핀 층의 전사 방법으로는 그래핀 층이 성장이 된 금속 포일을 PDMS로 이루어진 보호층과 접착시켜 에칭액에 담근 상태에서 상기 금속 포일의 에칭으로 제거하고, 상기 PDMS(Polydimethylsiloxan

e)로 이루어진 보호층 및 그래핀 층을 대상 기판에 전사시키는 방법이 있다. 이와 관련된 내용을 일본국특허공개공보 제 특개2012-140308호가 개시하고 있다.

[0005] 하지만, 금속 포일을 제거하기 위하여 식각액을 이용하는 식각 공정이 요구됨에 따라 상기 식각 공정이 상대적으로 장시간 소요되는 문제가 있으며 나아가 그래핀 층에 식각액이 비산하여 그래핀층이 오염되는 문제가 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명의 일 목적은 그래핀 박막을 대상 기판에 효과적으로 전사시킬 수 있는 그래핀 박막의 전사 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0007] 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 박막의 전사 방법에 있어서, 금속 포일 상에 그래핀 박막을 형성하고, 상기 그래핀 박막 상에 예비 열가소성 접착층를 형성한다. 이후, 상기 예비 열가소성 접착층를 녹여 상기 그래핀 박막을 상기 예비 열가소성 접착층에 콘택시키고, 상기 예비 열가소성 접착층를 경화시켜 상기 그래핀 박막이 부착된 열가소성 접착층을 형성한다. 이후, 상기 그래핀 박막 및 상기 열가소성 접착층을 상기 금속 포일로부터 물리적으로 분리시키고, 상기 그래핀 박막을 대상 기판에 전사시킨다.

[0008] 여기서, 상기 예비 열가소성 접착층는 65.0 내지 85.0 중량%의 프탈산 무산물 및 15.0 내지 25.0 중량%의 에틸렌 글리콜을 포함할 수 있다.

[0009] 또한, 상기 예비 열가소성 접착층을 이루는 물질은 100 내지 120° C 의 녹는점을 가질 수 있다.

[0010] 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 박막의 전사 방법은 상기 열가소성 접착층을 용제를 이용하여 제거는 공정이 추가적으로 수행될 수 있다.여기서, 상기 용제는 아세톤 용액을 포함할 수 있다.

발명의 효과

[0011] 본 발명에 따른 그래핀 박막의 전사 방법에 따르면, 가역적 성질을 열가소성 접착층를 용융 후 고화시킴으로써 그래핀 박막을 열가소성 접착층에 부착킬 수 있다. 이로써 그래핀 박막을 형성하기 위한 금속 호일을 제거하는 식각 공정이 생략될 수 있다. 이로써 전사 공정이 보다 효율적으로 수행될 수 있다.

[0012] 나아가, 상기 열가소성 접착층이 기존의 보호층의 기능을 함께 수행함에 따라 보호층을 상기 그래핀 박박 상에 별도로 형성하는 공정이 생략될 수 있다. 이로써 전사 공정에 요구되는 공정 시간이 단축될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0013] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 박막의 전사 방법을 설명하기 위한 순서도이다.

도 2 내지 도 6은 도1의 그래핀 박막의 전사 방법을 설명하기 위한 단면도들이다.

도 7은 본 발명의 그래핀 박막의 전사 방법에 따른 실리콘 산화막 상에 전사된 그래핀 박막을 설명하기 위한 사진들이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0014] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본 발명의 실시예들에 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. 첨부된 도면에 있어서, 대상물들의 크기와 양은 본 발명의 명확성을 기하기 위하여 실제보다 확대 또는 축소하여 도시한 것이다.

[0015] 제1, 제2 등의 용어는 다양한 구성요소들을 설명하는데 사용될 수 있지만, 상기 구성요소들은 상기 용어들에 의해 한정되어서는 안 된다. 상기 용어들은 하나의 구성요소를 다른 구성요소로부터 구별하는 목적으로만 사용된다. 예를 들어, 본 발명의 권리 범위를 벗어나지 않으면서 제1 구성요소는 제2 구성요소로 명명될 수 있고, 유사하게 제2 구성요소도 제1 구성요소로 명명될 수 있다.

[0016] 본 출원에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시예를 설명하기 위해 사용된 것으로, 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "구비하다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 단계, 기능, 구성요소 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 다른 특징들이나 단계, 기능, 구성요소 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[0017] 한편, 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.

[0018] 그래핀 박막의 전사 방법

[0019] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 박막의 전사 방법을 설명하기 위한 순서도이다. 도 2 내지 도 6은 도1의 그래핀 박막의 전사 방법을 설명하기 위한 단면도들이다.

[0020] 도 1 내지 도 6을 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 박막의 전사 방법에 있어서, 먼저 금속 포일(10) 상에 그래핀 박막(110)을 형성한다.(S110) 상기 그래핀 박막(110)은 상기 금속 포일(10)을 금속 촉매로 이용하여 화학적 기상 증착 공정을 통하여 형성될 수 있다. 여기서, 금속 포일(10)은 니켈, 구리, 루테늄, 이리듐, 철, 백금, 알루미늄 중 어느 하나 또는 이들의 합금으로 이루어질 수 있다.

[0021] 이어서, 상기 그래핀 박막(110) 상에 예비 열가소성 접착층(130)을 형성한다(S120). 상기 예비 열가소성 접착층(130)은 녹는점 온도 이상으로 가열할 경우 녹으며, 다시 녹는점 온도 이하로 냉각할 경우 다시 고화되는 가역성을 갖는 고분자 화합물로 이루어진다.

[0022] 본 발명의 일 실시예에 있어서, 상기 예비 열가소성 접착층(130)은 100 내지 120° C 의 녹는점을 갖는 물질로 선택될 수 있다. 이로써, 그래핀 박막(110)에 대한 열 손상이 억제될 수 있으며 나아가 상기 그래핀 박막(110)이 열가소성 접착층에 효과적으로 부착될 수 있다.

[0023] 상기 예비 열가소성 접착층(130)은 프탈산 무수물 및 에틸렌 글리콜을 포함할 수 있다. 특히, 상기 프탈산 무수물은 65.0 내지 85.0 중량% 및 에틸렌 글리콜은 15.0 내지 25.0 중량%의 에틸렌 글리콜의 조성비를 가질 수 있다.

[0024] 이후, 상기 예비 열가소성 접착층(130)에 가열함으로써 상기 예비 열가소성 접착층(130)을 용융시킴으로써 상기 그래핀 박막(110)을 상기 예비 열가소성 접착층(130)에 콘택시킨다(S130). 이로써 상기 그래핀 박막(110)이 상기 예비 열가소성 접착층(130)에 부착될 수 있다. 이때 상기 예비 열가소성 접착층(130)은 그 녹는점 이상의 온도로 가열할 수 있다.

[0025] 상기 예비 열가소성 접착층(130)은 프탈산 무수물 및 에틸렌 글리콜을 포함하는 예비 열가소성 접착층(130)은 100 내지 120° C 의 온도의 녹는점을 가질 수 있다.

[0026] 이후, 상기 예비 열가소성 접착층(130)을 상기 녹는점 이하의 온도에서 경화시켜 상기 그래핀 박막(110)이 부착된 상태로 열가소성 접착층(131)을 형성한다(S140). 이때 상기 금속 포일(10)은 상기 그래핀 박막(110)이 부착된 상태의 열가소성 접착층(131)로부터 물리적인 힘으로 분리될 수 있다. 즉, 상기 그래핀 박막(110)을 전사시키기 위하여 별도의 PMMA와 같은 보호층을 형성하는 공정이 생략될 수 있다.

[0027] 상기 그래핀 박막(110)이 부착된 상태의 열가소성 접착층(131)을 상기 금속 호일로부터 분리시킨다(S150). 이 경우, 물리적인 힘이 상기 금속 호일(10)과 상기 열가소성 접착층(131) 사이에 인가됨으로써 상기 금속 호일(10)로부터 열가소성 접착층(131)을 분리할 수 있다.

[0028] 이로써, 상기 금속 호일(10)을 제거하기 위한 별도의 식각 공정이 생략됨에 따라 전체적인 전사 공정의 시간이 단축될 수 있다. 또한 상기 금속 호일(10)을 제거하기 위한 식각 공정에 사용되는 식각액이 상기 그래핀 박막(110)을 오염시키는 것을 방지할 수 있다.

[0029] 이후, 상기 그래핀 박막(110)을 대상 기판(100)에 전사시킨다(S160). 이때, 상기 열가소성 접착층(131)에 부착된 그래핀 박막(110)을 상기 대상 기판(100)에 대하여 정렬시켜 상기 그래핀 박막(110)을 대상 기판(100)에 전

사시킬 수 있다.

[0030] 본 발명의 일 실시예에 있어서, 상기 열가소성 접착체를 용제를 이용하여 제거한다. 예를 들면, 상기 열가소성 접착제가 프탈산 무수물 및 에틸렌 글리콜을 포함할 경우, 아세톤 용액을 용제로 이용하여 제거할 수 있다.

[0031] 도 7은 본 발명의 그래핀 박막의 전사 방법에 따른 실리콘 산화막 상에 전사된 그래핀 박막을 설명하기 위한 사진들이다.

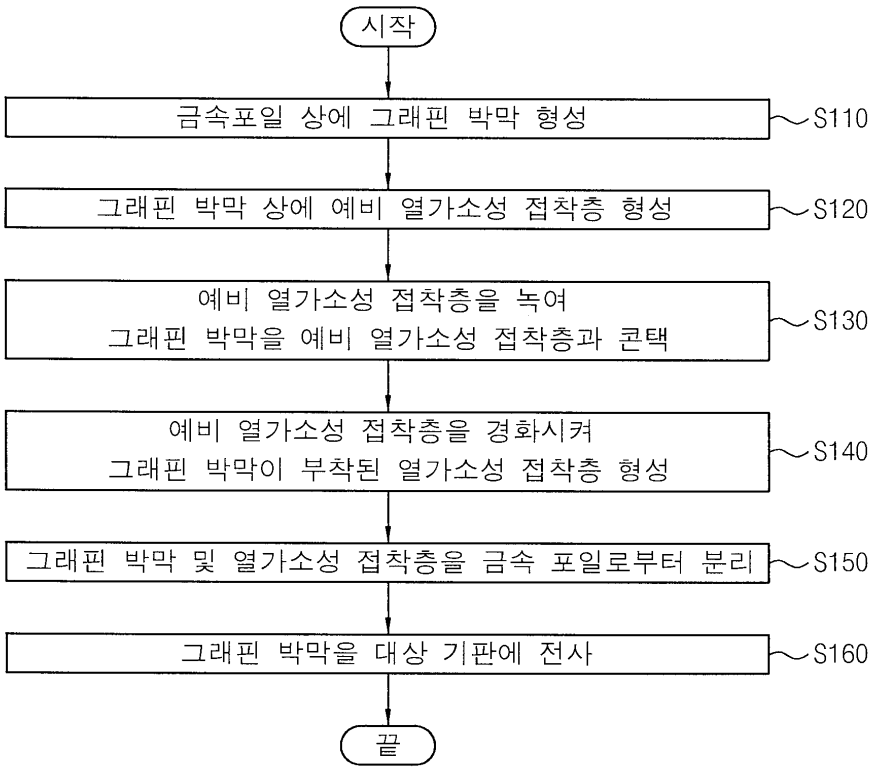
[0032] 구리 호일 상에 화학적 기상 증착 공정을 통하여 그래핀 박막을 형성하였다. 이후, 상기 그래핀 박막 상에 프탈산 무수물 및 에틸렌 글리콜을 포함하는 예비 열가소성 접착층로서 크리스탈본드(CRYSTALBOND™)를 이용하여 형성하고 녹는점 이상인 110° C 온도로 가열 및 냉각시켜 열가소성 접착제에 그래핀 박막을 부착시켰다.

[0033] 이후, 그래핀 박막이 부착된 열가소성 접착층를 상기 구리 호일로부터 물리적인 힘으로 분리시켰다. 이후, 상기 그래핀 박막을 대상 기판인 실리콘 산화물 기판에 전사시킨 후 상기 열가소성 접착층을 아세톤 용액으로 제거하였다.

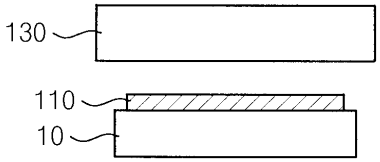
[0034] 도 7에서, 적색 화살표로 도시된 부분이 그래핀 박막이 형성된 영역이며, 녹색 화살표는 실리콘 산화물 기판에 해당하는 영역이다. 이로써 그래핀 박막이 상기 실리콘 산화물 기판 상에 전사된 상태를 확인할 수 있다.

도면

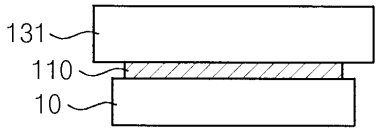
도면1



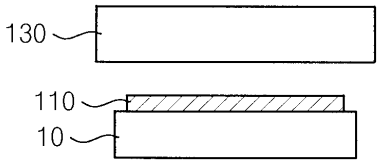
도면2



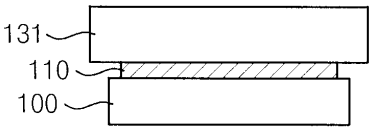
도면3



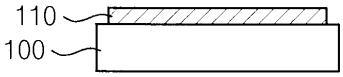
도면4



도면5



도면6



도면7

