



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2019년10월29일
(11) 등록번호 10-2037990
(24) 등록일자 2019년10월23일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 32/186 (2017.01) C23C 16/26 (2006.01)
C23C 16/54 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C01B 32/186 (2017.08)
C23C 16/26 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2019-0045320
(22) 출원일자 2019년04월18일
심사청구일자 2019년04월18일
(56) 선행기술조사문헌
KR1020170025081 A*
KR1020110137661 A*
KR1020120088524 A
KR1020140096648 A
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
세종대학교산학협력단
서울특별시 광진구 능동로 209 (군자동, 세종대학교)
(72) 발명자
김근수
서울특별시 성동구 송정4가길 49, 301호
이동윤
서울특별시 마포구 토정로18길 11 래미안웰스트림
107동 601호
(74) 대리인
특허법인이상

전체 청구항 수 : 총 18 항

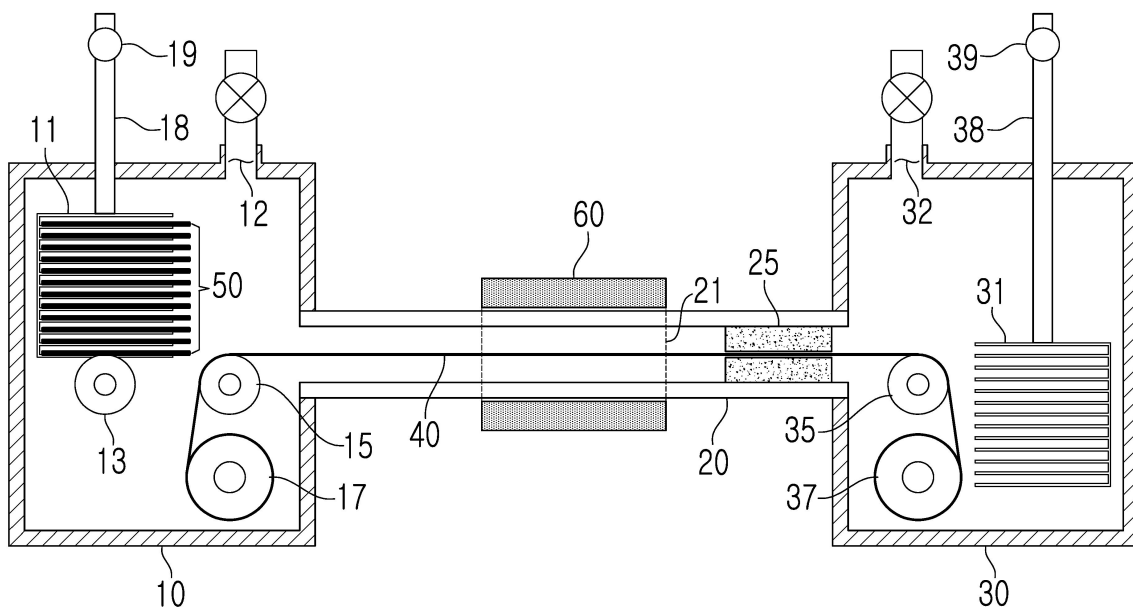
심사관 : 최문정

(54) 발명의 명칭 그래핀 제조장치 및 그래핀 제조방법

(57) 요약

그래핀 제조장치 및 그래핀 제조방법을 제공한다. 그래핀 제조장치는 제1 회전물을 구비하고 다수 개의 날개 기판들을 로딩하기 위한 기관 로딩 챔버, 제2 회전물을 구비하는 롤 챔버, 상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치되고 증착 영역을 구비하는 반응 챔버, 상기 제1 회전물에 접하고 상기 반응 챔버 내에서 연장되고 상기 제2 회전물에 접하는 컨베이어 벨트, 및 상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 기관을 하나씩 상기 컨베이어 벨트에 공급하는 로딩수단을 포함한다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류
C23C 16/545 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 1711091236

부처명 과학기술정보통신부

연구관리전문기관 한국연구재단

연구사업명 중견연구

연구과제명 Conveyer-CVD를 활용한 다양한 2차원 소재의 합성과 집속된 고에너지 빔을 이용한 직접 패
 턴 기능화 기반 바이오 및 광전소자 응용 연구

기 여 율 1/1

주관기관 세종대학교

연구기간 2019.03.01 ~ 2020.02.29

명세서

청구범위

청구항 1

제1 회전롤을 구비하고 다수 개의 날개 기관들을 로딩하기 위한 기관 로딩 챔버;

제2 회전롤을 구비하는 롤 챔버;

상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치되고 증착 영역을 구비하는 반응 챔버;

일측이 상기 제1 회전롤에 감긴 상태에서 상기 반응 챔버 내에서 연장되고 타측이 상기 제2 회전롤에 감긴 상태에 있는 컨베이어 벨트;

상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 기관을 하나씩 상기 컨베이어 벨트 상에 공급하는 로딩수단;

상기 기관 로딩 챔버에 연결된 가스 공급 라인과 상기 롤 챔버에 연결된 가스 방출 라인; 및

상기 증착 영역과 상기 롤 챔버 사이의 상기 반응 챔버 내에 배치된 흡착제를 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 다수 개의 날개 기관들은,

층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하는 기관 로딩 홀더의 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들에 각각 배치되는 그래핀 제조장치.

청구항 3

제2항에 있어서,

상기 로딩수단은 로딩롤이고,

상기 기관 로딩 홀더 내 각 지지판은 그에 의해 지지된 기관이 상기 로딩롤에 접하도록 개구부를 구비하는 그래핀 제조장치.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 롤 챔버는 상기 반응 챔버 내에서 박막이 성장된 다수의 기관들을 언로딩 하기 위한 기관 언로딩 챔버이고,

상기 기관 언로딩 챔버 내에, 상기 컨베이어 벨트로부터 상기 기관들을 하나씩 기관 언로딩 홀더로 전달하는 언로딩수단을 더 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 기관 언로딩 홀더는, 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들 중 어느 하나에 상기 기관을 수용하는 그래핀 제조장치.

청구항 6

제5항에 있어서,

상기 언로딩수단은 언로딩롤이고,

상기 기관 언로딩 홀더 내 각 지지판은 상기 언로딩롤을 수용하는 개구부를 구비하여, 상기 언로딩롤은 상기 지

지관의 상부로 상기 기관이 수용되도록 동작하는 그래핀 제조장치.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 제1 회전롤에 인접하여 배치되고 상기 반응 챔버 내에서 상기 컨베이어 벨트를 수평 상태로 유지하는 제1 가이드롤; 및

상기 롤 챔버 내에 상기 제2 회전롤에 인접하여 배치되고 상기 반응 챔버 내에서 상기 컨베이어 벨트를 수평 상태로 유지하는 제2 가이드롤을 더 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 반응 챔버 외부에 상기 증착 영역을 둘러싸는 방열장치를 더 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 9

삭제

청구항 10

삭제

청구항 11

제1항에 있어서,

상기 기관 로딩 챔버는 상기 기관이 로딩되는 기관 로딩 공간과 상기 기관이 반응을 대기하는 대기 공간을 구분하는 차단판을 더 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 12

제1항에 있어서,

상기 롤 챔버는 상기 반응 챔버 내에서 박막이 성장된 다수의 기관들을 언로딩 하기 위한 기관 언로딩 챔버이고,

상기 기관 언로딩 챔버는 상기 기관이 언로딩되는 기관 언로딩 공간과 상기 기관 상에 박막이 증착된 후 언로딩을 대기하는 대기 공간을 구분하는 차단판을 더 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 13

제1항에 있어서,

상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 상기 반응 챔버와 별도로 배치된 냉각 챔버를 더 포함하고,

상기 컨베이어 벨트는 상기 냉각 챔버 내로 연장되어 상기 기관 로딩 챔버, 상기 반응 챔버, 상기 롤 챔버, 및 상기 냉각 챔버 내에서 폐쇄 루프를 형성하는 그래핀 제조장치.

청구항 14

제13항에 있어서,

상기 냉각 챔버는 상기 반응 챔버 하부에 배치된 그래핀 제조장치.

청구항 15

제13항에 있어서,

상기 냉각 챔버는 냉각 영역을 구비하고,

상기 냉각 영역과 상기 롤 챔버 사이, 그리고 상기 냉각 영역과 상기 기관 로딩 챔버 사이의 상기 냉각 챔버

내에 배치되고, 상기 컨베이어 벨트를 수용하는 관통홀들을 구비하는 격벽들을 포함하는 그래핀 제조장치.

청구항 16

제1 회전롤을 구비하고 다수 개의 날개 기관들을 로딩하기 위한 기관 로딩 챔버, 제2 회전롤을 구비하는 롤 챔버, 상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치되고 증착 영역을 구비하는 반응 챔버, 일측이 상기 제1 회전롤에 감긴 상태에서 상기 반응 챔버 내에서 연장되고 타측이 상기 제2 회전롤에 감긴 상태에 있는 컨베이어 벨트, 상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 기관을 하나씩 상기 컨베이어 벨트 상에 공급하는 로딩수단, 상기 기관 로딩 챔버에 연결된 제1 가스라인과 상기 롤 챔버에 연결된 제2 가스 라인, 및 상기 증착 영역과 상기 롤 챔버 사이의 상기 반응 챔버 내에 배치된 흡착제를 포함하는 그래핀 제조장치를 제공하는 단계;

상기 제1 가스 라인을 통해 불활성 가스를 공급하여 상기 기관 로딩 챔버, 상기 반응 챔버, 및 상기 롤 챔버를 불활성 가스 분위기로 만드는 단계;

상기 불활성 가스 분위기에서 상기 기관 로딩 챔버 내에서 컨베이어 벨트 상에 날개의 기관을 공급하는 단계;

상기 컨베이어 벨트 상에 공급된 날개의 기관이 상기 증착 영역 전의 상기 반응 챔버 내부를 이동할 때, 상기 반응 챔버 내부는 상기 불활성 가스 분위기로 유지되는 단계;

상기 컨베이어 벨트 상의 상기 기관이 상기 증착 영역 내부에 위치할 때, 상기 제1 가스 라인을 통해 반응가스를 공급하여 상기 반응 챔버 내부를 반응 가스 분위기로 만든 후 상기 기관 상에 그래핀을 성장시키는 단계;

상기 제1 가스 라인을 통해 불활성 가스를 공급하여 잔류 반응가스와 반응후 생성가스를 상기 제2 가스 라인을 통해 퍼지하여, 상기 기관 로딩 챔버, 상기 반응 챔버, 및 상기 롤 챔버를 불활성 가스 분위기로 만드는 단계; 및

상기 그래핀 성장된 기관이 상기 증착 영역 후의 상기 반응 챔버 내부를 이동할 때, 상기 반응 챔버 내부는 상기 불활성 가스 분위기로 유지되는 단계를 포함하는 그래핀 제조방법.

청구항 17

제16항에 있어서,

상기 그래핀을 상기 반응 가스 분위기에서 성장시키는 단계는,

상기 반응 챔버 내부를 환원 가스 분위기로 유지하면서 상기 기관을 열처리하는 단계; 및

상기 반응 챔버 내부를 탄소 가스 분위기로 유지하면서 상기 열처리된 기관 상에 그래핀을 성장시키는 단계를 포함하는 그래핀 제조방법.

청구항 18

제16항에 있어서,

상기 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급하기 전에,

상기 기관 로딩 챔버 내에 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들에 상기 기관들 각각을 수용하는 기관 로딩 홀더를 로딩하는 단계를 더 포함하고,

상기 기관 로딩 홀더의 최하단부에 위치하는 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급하는 그래핀 제조방법.

청구항 19

제16항에 있어서,

상기 롤 챔버는 기관 언로딩 챔버이고,

상기 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급하기 전에, 상기 기관 언로딩 챔버 내에 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하는 기관 언로딩 홀더를 배치하는 단계를 더 포함하고,

상기 증착 영역 후의 상기 반응 챔버 내부를 이동하여 상기 기관 언로딩 챔버 내로 공급된 상기 그래핀이 성장된 기관은 상기 기관 언로딩 홀더 내의 지지판들 사이의 비어 있는 공간들 중 최상단부 공간에 공급되는 단계를 더 포함하는 그래핀 제조방법.

청구항 20

제16항에 있어서,

상기 그래핀 제조장치는 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 상기 반응 챔버와는 별도로 배치된 냉각 챔버를 더 포함하고,

상기 컨베이어 벨트는 상기 냉각 챔버 내에서 냉각되는 그래핀 제조방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 화학기상증착 장치에 관한 것으로, 보다 상세하게는 그래핀 제조장치에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 그래핀은 sp^2 혼성 오비탈 구조를 갖는 6개의 탄소가 육각형으로 연결된 벌집 모양의 2차원 결정구조를 갖고 있다. 이러한 그래핀은 원자 하나 두께의 얇은 막임에도 안정적인 분자 구조를 가지고 있다. 예상되는 그래핀의 응용분야는 터치패널, 플렉서블 디스플레이, 고효율 태양전지, 방열필름, 코팅 재료, 초박형 스피커, 바닷물 담수화 필터, 이차전지용 전극, 초고속 충전기 등 다양하며, 더 많은 분야에 사용하기 위한 연구가 전 세계적으로 진행되고 있다.

[0003] 분말부터 박막까지 많은 그래핀 제조 방법들이 연구되었지만 최근에는 화학기상증착법에 많은 연구자들이 집중하고 있다. 화학기상증착법은 그래핀을 대면적 성장시킬 수 있고, 반도체와 맞먹는 생산 속도를 가지고 있어서 상업성이 가장 높은 것을 보고 있다. 화학기상증착법은 메탄과 같은 탄소 소스 가스를 고온이나 고에너지로 분해해서 탄소와 흡착성이 우수한 전이금속(Cu, Ni, Co, Fe, Ge, Ru, Pt 등)을 촉매층으로 공급해주면 탄소가 촉매 층과 반응하여 적절한 양의 탄소가 촉매 층에 녹아 들어가거나 흡착된다. 이 후 냉각을 하면 촉매 층에 포함되어 있던 탄소원자들이 표면에서 결정화되면서 그래핀 결정구조를 형성하게 되는 방식이다. 합성된 그래핀은 촉매층을 제거함으로써 기관으로부터 분리시킨 후 원하는 용도에 맞게 사용할 수 있다.

[0004] 다만, 화학기상증착법을 이용한 그래핀 성장 분야에서 단일 박막 시트를 이용해서 만들어지는 그래핀의 품질은 롤투롤 공정에 의해 만들어지는 그래핀의 품질보다 더 우수한 반면, 단일 박막 시트에 화학기상증착법으로 그래핀을 성장시키는 경우는 '가열 → 열처리 → 그래핀 성장 → 냉각'과정의 복잡한 과정을 거치는 등 생산성이 떨어질 수 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는, 롤투롤 방식과 유사한 방식을 적용하면서도 우수한 품질의 그래핀을 얻을 수 있는 화학기상증착 장치 및 방법을 제공함에 있다.

[0006] 본 발명의 기술적 과제들은 이상에서 언급한 기술적 과제로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 기술적 과제들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0007] 상기 기술적 과제를 이루기 위하여 본 발명의 일 실시예는 그래핀 제조장치를 제공한다. 그래핀 제조장치는 제1 회전롤을 구비하고 다수 개의 날개 기관들을 로딩하기 위한 기관 로딩 챔버, 제2 회전롤을 구비하는 롤 챔버, 상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치되고 증착 영역을 구비하는 반응 챔버, 상기 제1 회전롤에 접하고 상기 반응 챔버 내에서 연장되고 상기 제2 회전롤에 접하는 컨베이어 벨트, 및 상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 기관을 하나씩 상기 컨베이어 벨트 상에 공급하는 로딩수단을 포함한다.

[0008] 상기 다수 개의 날개 기관들은, 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들에 상기 기관들 각각을 수용하는 기관 로딩 홀더 내에 배치될 수 있다.

[0009] 상기 로딩수단은 로딩롤이고, 상기 기관 로딩 홀더 내 각 지지판은 그에 의해 지지된 기관이 상기 로딩롤에 접

하도록 개구부를 구비할 수 있다. 상기 롤 챔버는 상기 반응 챔버 내에서 박막이 성장된 다수의 기관들을 언로딩 하기 위한 기관 언로딩 챔버이고, 상기 기관 언로딩 챔버 내에, 상기 컨베이어 벨트로부터 상기 기관들을 하나씩 기관 언로딩 홀더로 전달하는 언로딩수단을 더 포함할 수 있다. 상기 기관 언로딩 홀더는, 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들 중 어느 하나에 상기 기관을 수용할 수 있다. 상기 언로딩수단은 언로딩롤이고, 상기 기관 언로딩 홀더 내 각 지지판은 상기 언로딩롤을 수용하는 개구부를 구비하여, 상기 언로딩롤은 상기 지지판의 상부로 상기 기관이 수용되도록 동작할 수 있다.

- [0010] 상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 반응 챔버 내에서 상기 컨베이어 벨트를 수평 상태로 유지하는 제1 가이드롤이 상기 제1 회전롤에 인접하여 배치되고, 상기 롤 챔버 내에 상기 반응 챔버 내에서 상기 컨베이어 벨트를 수평 상태로 유지하는 제2 가이드롤이 상기 제2 회전롤에 인접하여 배치될 수 있다.
- [0011] 상기 반응 챔버 외부에 상기 증착 영역을 둘러싸는 방열장치를 더 포함할 수 있다. 상기 증착 영역과 상기 롤 챔버 사이의 상기 반응 챔버 내에 배치된 흡착제를 더 포함할 수 있다.
- [0012] 상기 기관 로딩 챔버에 제1 가스 라인이 연결되고, 상기 롤 챔버에 제2 가스 라인이 연결되고, 상기 제1 가스 라인은 가스 공급 라인이고, 상기 제2 가스 라인은 가스 방출 라인일 수 있다.
- [0013] 상기 기관 로딩 챔버는 상기 기관이 로딩되는 기관 로딩 공간과 상기 기관이 반응을 대기하는 대기 공간을 구분하는 차단판을 더 포함할 수 있다. 상기 롤 챔버는 상기 반응 챔버 내에서 박막이 성장된 다수의 기관들을 언로딩 하기 위한 기관 언로딩 챔버이고, 상기 기관 언로딩 챔버는 상기 기관이 언로딩되는 기관 언로딩 공간과 상기 기관 상에 박막이 증착된 후 언로딩을 대기하는 대기 공간을 구분하는 차단판을 더 포함할 수 있다.
- [0014] 상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 냉각 챔버가 배치될 수 있다. 상기 베이어 벨트는 상기 냉각 챔버 내로 연장되어 상기 기관 로딩 챔버, 상기 반응 챔버, 상기 롤 챔버, 및 상기 냉각 챔버 내에서 폐쇄 루프를 형성할 수 있다. 상기 냉각 챔버는 상기 반응 챔버 하부에 배치될 수 있다. 상기 냉각 챔버는 냉각 영역을 구비하고, 상기 냉각 영역과 상기 롤 챔버 사이와 상기 냉각 영역과 상기 기관 로딩 챔버 사이의 상기 냉각 챔버 내에 배치되고, 상기 컨베이어 벨트를 수용하는 관통홀들을 구비하는 격벽들을 포함할 수 있다.
- [0015] 상기 기술적 과제를 이루기 위하여 본 발명의 일 실시예는 그래핀 제조방법을 제공한다. 먼저, 제1 회전롤을 구비하고 다수 개의 날개 기관들을 로딩하기 위한 기관 로딩 챔버, 제2 회전롤을 구비하는 롤 챔버, 상기 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치되고 증착 영역을 구비하는 반응 챔버, 상기 제1 회전롤에 접하고 상기 반응 챔버 내에서 연장되고 상기 제2 회전롤에 접하는 컨베이어 벨트, 및 상기 기관 로딩 챔버 내에 상기 기관을 하나씩 상기 컨베이어 벨트 상에 공급하는 로딩수단을 포함하는 그래핀 제조장치를 제공한다. 상기 기관 로딩 챔버 내에서 컨베이어 벨트 상에 날개의 기관을 공급한다. 상기 컨베이어 벨트 상에 공급된 날개의 기관은 상기 증착 영역 전의 상기 반응 챔버 내부를 이동할 때, 상기 반응 챔버 내부는 진공 또는 불활성 가스 분위기로 유지된다. 상기 컨베이어 벨트 상의 상기 기관이 상기 증착 영역 내부에 위치할 때, 상기 반응 챔버 내부는 반응 가스 분위기로 유지되어 상기 기관 상에 그래핀을 성장시킨다. 상기 그래핀 성장된 기관이 상기 증착 영역 후의 상기 반응 챔버 내부를 이동할 때, 상기 반응 챔버 내부는 진공 또는 불활성 가스 분위기로 유지된다.
- [0016] 상기 그래핀을 성장시키는 단계는, 상기 반응 챔버 내부를 환원 가스 분위기로 유지하면서 상기 기관을 열처리하는 단계; 및 상기 반응 챔버 내부를 탄소 가스 분위기로 유지하면서 상기 열처리된 기관 상에 그래핀을 성장시키는 단계를 포함할 수 있다.
- [0017] 상기 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급하기 전에, 상기 기관 로딩 챔버 내에 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들에 상기 기관들 각각을 수용하는 기관 로딩 홀더를 로딩하고, 상기 기관 로딩 홀더의 최하단부에 위치하는 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급할 수 있다.
- [0018] 상기 롤 챔버는 기관 언로딩 챔버이고, 상기 기관을 상기 컨베이어 벨트 상으로 공급하기 전에, 상기 기관 언로딩 챔버 내에 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하는 기관 언로딩 홀더를 배치하고, 상기 증착 영역 후의 상기 반응 챔버 내부를 이동하여 상기 기관 언로딩 챔버 내로 공급된 상기 그래핀이 성장된 기관은 상기 기관 언로딩 홀더 내의 지지판들 사이의 비어 있는 공간들 중 최상단부 공간에 공급될 수 있다.
- [0019] 상기 그래핀 제조장치는 기관 로딩 챔버와 상기 롤 챔버 사이에 배치된 냉각 챔버를 더 포함하고, 상기 컨베이어 벨트는 상기 냉각 챔버 내에서 냉각될 수 있다.

발명의 효과

[0020] 상술한 바와 같이 본 발명 실시예에 따른 그래핀 제조장치는 물 형태의 기관이 아닌 컨베이어 벨트 상에 날개의 기관을 배치시켜, 기관이 증착영역과 증착영역이 아닌 영역에서 반응 챔버 내 분위기를 달리할 수 있다. 구체적으로, 기관이 가열되고 있는 증착 영역 내에 위치할 때에만 반응 가스를 공급하고, 기관이 반응 챔버 내에서 증착 영역에 들어가기 전 그리고 증착 영역에서 나온 후에는 반응 챔버는 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기로 유지하여, 고품질의 그래핀을 얻을 수 있다.

[0021] 그러나, 본 발명의 효과들은 이상에서 언급한 효과로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 효과들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

도면의 간단한 설명

- [0022] 도 1는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면을 나타낸 개략도이다.
- 도 2는 기관 로딩 홀더 및 로딩롤을 하부에서 바라본 사시도이다.
- 도 3, 도 5 내지 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 동작방법을 순차적으로 나타낸 개략도들이다.
- 도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 증착영역 온도, 가스 공급, 가스 퍼지의 타이밍도이다.
- 도 4는 도 3에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤의 배면을 나타낸 배면 사시도이다.
- 도 9는 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면을 나타낸 개략도이다.
- 도 10 및 도 12는 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면 및 동작방법 중 일부를 순차적으로 나타낸 개략도들이다.
- 도 11 및 도 13은 각각 도 10 및 도 12의 기관 로딩 홀더 및 로딩롤을 하부에서 바라본 사시도들이다.
- 도 14 내지 도 17은 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면 및 동작방법 중 일부를 순차적으로 나타낸 개략도들이다.
- 도 18은 그래핀 제조예에 따라 얻어진 그래핀 박막이 성장된 기관들을 촬영한 사진이다.
- 도 19는 그래핀 제조예에 따라 성장된 그래핀 박막의 서로 다른 세 지점에 대한 라만 스펙트럼(a)과 광학현미경 이미지(b)를 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0023] 이하, 본 발명을 보다 구체적으로 설명하기 위하여 본 발명에 따른 바람직한 실시예를 첨부된 도면을 참조하여 보다 상세하게 설명한다. 그러나, 본 발명은 여기서 설명되어지는 실시예에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 층이 다른 층 또는 기관 "상"에 있다고 언급되어지는 경우에 그것은 다른 층 또는 기관 상에 직접 형성될 수 있거나 또는 그들 사이에 제 3의 층이 개재될 수도 있다.
- [0024] 본원 명세서 전체에서, 어떤 부분이 어떤 구성요소를 "포함" 한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성 요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미한다.
- [0025] 본원 명세서 전체에서 사용되는 정도의 용어 "약", "실질적으로" 등은 언급된 의미에 물질 허용 오차가 제시될 때 그 수치에서 또는 그 수치에 근접한 의미로 사용되고, 본원의 이해를 돕기 위해 정확하거나 절대적인 수치가 언급된 개시 내용을 비양심적인 침해자가 부당하게 이용하는 것을 방지하기 위해 사용된다.
- [0027] 도 1는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면을 나타낸 개략도이다.
- [0028] 도 1을 참조하면, 그래핀 제조장치는 기관 로딩 챔버(10)과 롤 챔버(30), 및 이들 사이에 배치된 반응 챔버(20)를 구비한다. 상기 그래핀 제조장치는 그래핀 화학기상증착장치일 수 있다.
- [0029] 상기 기관 로딩 챔버(10)는 다수 개의 날개 기관들을 로딩하기 위한 것으로서, 제1 회전롤(17)을 구비할 수 있다. 상기 기관 로딩 챔버(10) 내에 상기 제1 회전롤(17)에 인접하여 제1 가이드롤(15)이 배치될 수 있다. 상기 롤 챔버(30)은 제2 회전롤(37)을 구비할 수 있다. 또한, 상기 롤 챔버(30) 내에 상기 제2 회전롤(37)에 인접하여 제2 가이드롤(35)이 배치될 수 있다.
- [0030] 상기 반응 챔버(20) 내에 반응 챔버(20)를 따라 연장되는 컨베이어 벨트(40)가 위치할 수 있고, 상기 컨베이어

벨트(40)는 상기 로딩 챔버(10) 내로 연장되어 상기 로딩 챔버(10) 내에 위치하는 상기 제1 회전롤(17)에 감겨 있을 수 있다. 또한, 상기 컨베이어 벨트(40)는 제1 가이드롤(15)에 의해 가이드되어 상기 반응 챔버(20) 내에서 수평상태를 유지할 수 있다. 마찬가지로, 상기 컨베이어 벨트(40)는 상기 롤 챔버(30) 내로도 연장되어 상기 롤 챔버(30) 내에 위치하는 제2 회전롤(37)에 감길 수 있다. 또한, 상기 컨베이어 벨트(40)는 제2 가이드롤(35)에 의해 가이드되어 상기 반응 챔버(20) 내에서 수평상태를 유지할 수 있다. 상기 제1 및 제2 가이드롤(15, 35)은 상기 컨베이어 벨트(40)가 처지지 않고 수평상태를 유지할 수 있도록 한다.

[0031] 또한, 회전롤들(17, 37)에 클러치를 도입함으로써, 상기 컨베이어 벨트(40)에는 일방향으로만 장력이 걸리고, 반대방향으로는 특정량 이상의 장력이 걸리지 않을 수 있다. 그 결과, 컨베이어 벨트(40)가 고온저압 하에서 끊어지지 않을 수 있다. 한편, 반응 진행 중 가열에 의해 컨베이어 벨트(40)가 늘어날 수 있는데, 다시 말해서, 컨베이어 벨트(40)에 걸리는 장력이 줄어들 수 있는데, 이를 방지하기 위해 컨베이어 벨트(40)에 접촉하는 탭퍼(미도시)를 설치할 수 있다. 이에 한정되지 않고, 상기 가이드롤(15, 35)과 회전롤들(17, 37) 중 적어도 어느 하나에 장력 유지 수단으로서의 역할을 할 수도 있다.

[0032] 상기 반응 챔버(20)는 상기 로딩 챔버(10)와 상기 롤 챔버(30) 사이에서 수평으로 위치하며, 상기 로딩 챔버(10) 또는 상기 롤 챔버(30)의 높이보다 작은 높이를 가질 수 있다. 상기 반응 챔버(20)는 상기 로딩 챔버(10) 및 상기 롤 챔버(30) 각각에 대해 이격하여 배치된 증착 영역(21)을 구비하고, 상기 증착 영역(21)을 둘러싸는 방열장치(60)가 배치될 수 있다. 상기 방열장치(60)는 상기 증착 영역(21)에 가해지는 열이 외부로 방출하는 것을 억제하는 장치일 수 있다. 상기 방열장치(60)에 의해 상기 증착 영역(21)이 정의될 수 있다. 상기 방열장치(60) 내에 가열기가 배치될 수도 있고, 혹은 상기 증착 영역(21) 내부에 가열기가 배치될 수도 있다. 이 가열기는 저항 가열기, 고주파 유도 가열기, 마이크로웨이브 가열기, 적외선 가열기, 근적외선 가열기, 혹은 이들의 조합으로 구성될 수 있다. 상기 방열장치(60) 내에 냉각기 일 예로서, 냉각수 라인 또한 배치될 수 있다.

[0033] 상기 증착 영역(21)과 상기 롤 챔버(30) 사이의 상기 반응 챔버(20) 내에 흡착제(25)가 배치될 수 있다. 상기 흡착제(25)는 상기 컨베이어 벨트(40)의 진행을 허용하는 관통홀을 구비할 수 있다.

[0034] 상기 로딩 챔버(10)에는 제1 가스 라인(12)이 연결되고, 상기 롤 챔버(30)에는 제2 가스 라인(32)이 연결될 수 있다. 상기 제1 가스 라인(12)은 가스 공급 라인일 수 있고, 상기 제2 가스 라인(32)은 가스 배출 라인일 수 있다. 가스 공급 라인(12)과 가스 배출 라인(32)에 각각 유량조절밸브가 배치될 수 있다.

[0035] 상기 로딩 챔버(10) 내에는 다수의 기관들을 수용하는 기관 로딩 홀더(11) 및 기관 로딩 홀더(11)로부터 날개의 기관을 이동시키는 로딩수단이 배치될 수 있다. 상기 로딩수단은 로딩롤(13)일 수 있다.

[0036] 도 2는 기관 로딩 홀더 및 로딩롤을 하부에서 바라본 사시도이다. 도 1에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤은 도 2의 I'-I를 따라 취해진 단면에 해당할 수 있다. 다만, 도 2에서는 기관을 도시하지 않았다.

[0037] 도 1 및 도 2를 참조하면, 기관 로딩 홀더(11)는 층층이 적층된 다수의 지지판들(11')을 구비하여 서로 인접하는 지지판들(11') 사이의 공간들 중 적어도 일부의 공간들에 기관들(50)을 각각 수용할 수 있다. 상기 기관 로딩 홀더(11)의 상부에는 제1 축(18)이 연결되어 있고, 상기 제1 축(18)은 제1 구동기(19)에 연결되어, 제1 구동기(19)의 구동에 의해 제1 축(18)이 상하부로 수직이동하면서 기관 로딩 홀더(11)의 높이를 변화시킬 수 있다. 상기 기관 로딩 홀더(11)는 장치 구체적으로, 상기 제1 축(18)에 탈부착될 수 있다.

[0038] 기관 로딩 홀더 (11)는 그의 하부면 내에 개구부(11a)를 구비하고, 도시된 바와 같이, 상기 로딩롤(13)이 로딩 챔버(10)의 뒤쪽 측벽으로부터 연장되도록 설치된 경우, 상기 개구부(11a)는 로딩 챔버(10)의 뒤쪽 측벽을 바라보는 방향으로 형성되어 있을 수 있다. 상기 개구부(11a)에 의해 기관 로딩 홀더 (11)의 각 지지판들(11')은 개구부를 구비하여 상부면 또는 하부면에서 바라보았을 때 "ㄷ"자 모양으로 절곡된 형태를 가질 수 있다. 상기 기관 로딩 홀더 (11)가 상하부로 수직이동할 때, 상기 개구부(11a) 내에 상기 로딩롤(13)이 위치할 수 있다.

[0039] 다시 도 1을 참조하면, 상기 롤 챔버(30)는 기관 언로딩 챔버일 수 있는데, 이 경우 상기 언로딩 챔버(30) 내에도 층층이 적층된 다수의 지지판들을 구비하여 서로 인접하는 지지판들 사이의 공간들 중 적어도 일부의 공간들에 기관들을 각각 수용할 수 있는 기관 언로딩 홀더(31)가 배치될 수 있다. 상기 기관 언로딩 홀더(31)의 상부에는 제2 축(38)이 연결되어 있고, 상기 제2 축(38)은 제2 구동기(39)에 연결되어, 제2 구동기(39)의 구동에 의해 제2 축(38)이 상하부로 수직이동하면서 기관 언로딩 홀더(31)의 높이를 변화시킬 수 있다. 상기 기관 언로딩 홀더(31)는 장치 구체적으로, 상기 제2 축(38)에 탈부착될 수 있다.

[0041] 도 3, 도 5 내지 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래픽 제조장치의 동작방법을 순차적으로 나타낸 개략도

들이다. 도 4는 도 3에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤을 하부면에서 바라본 사시도이다. 도 3에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤은 도 4의 I'-I를 따라 취해진 단면에 해당할 수 있다. 다만, 도 4에서는 하나의 기관만을 도시하였다. 도 8는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 증착영역 온도, 가스 공급, 가스 퍼지의 타이밍도이다.

[0042] 도 1, 도 3, 도 5 내지 도 7을 도 8과와 함께 참조하여, 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 동작방법을 순차적으로 설명한다.

[0043] 도 1 및 도 8을 참조하면, 로딩 챔버(10) 내에 다수의 기관들(50)을 수용하는 기관 로딩 홀더(11)를 배치할 수 있다. 상기 기관(50)은 금속 기관일 수 있다. 그러나, 이에 한정되지 않고 비금속 기관일 수도 있다. 상기 기관(50) 상에 금속 촉매층이 형성되어 있을 수 있다. 그러나, 금속 기관이 금속 촉매의 역할을 할 수 있는 경우, 금속 촉매층은 생략될 수도 있다. 금속 촉매는 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 알루미늄(Al), 크롬(Cr), 구리(Cu), 마그네슘(Mg), 망간(Mn), 몰리브덴(Mo), 로듐(Rh), 실리콘(Si), 탄탈럼(Ta), 티타늄(Ti), 텅스텐(W), 우라늄(U), 바나듐(V), 팔라듐(Pd), 이트륨(Y), 및 지르코늄(Zr)으로 이루어진 그룹으로부터 선택된 적어도 한 종류 이상을 포함하는 순금속 또는 합금일 수 있다. 일 예로서, 상기 기관(50)은 구리기관이며, 별도의 금속 촉매층을 구비하지 않을 수 있다.

[0044] 또한, 언로딩 챔버(30) 내에 비어있는 기관 언로딩 홀더(31)를 배치할 수 있다. 이 후, 그래핀 제조장치 즉, 로딩 챔버(10), 언로딩 챔버(30), 및 이들 사이에 배치된 반응 챔버(20)는 외부로부터 차단되고 또한, 내부가 진공상태가 되도록 가스 배출라인(32)을 통해 내부 가스를 펌핑할 수 있다. 진공상태를 얻은 후, 가스 공급라인(12)을 통해 불활성 가스를 공급하여 상기 반응 챔버(20) 내에 불활성 가스 분위기를 만들 수도 있다($t_{1a}-t_{1b}$). 이 때, 공급된 불활성 가스를 가스 배출라인(32)을 통해 배출하여 챔버 내 압력을 조절할 수 있다. 또한, 상기 증착 영역(21)을 가열기(미도시)를 통해 가열할 수 있다. 그러나, 불활성 가스 공급은 생략될 수도 있고 증착 영역(21)의 가열은 진공상태에서 진행될 수도 있다.

[0045] 도 3, 도 4, 및 도 8을 참조하면, 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기에서 제1 구동기(19)를 동작시켜 제1 축(18)을 하부로 이동시켜 로딩롤(13)이 기관 로딩 홀더(11) 내에 수용된 대상 기관 즉, 최하단 기관 (50a)의 하부면과 접하도록 한 후, 상기 로딩롤(13)을 시계방향(도 3 기준)으로 동작시켜 상기 대상 기관(50a)을 기관 로딩 홀더(11)로부터 빼내어 제1 가이드롤(15)에 의해 가이드된 컨베이어 벨트(40) 상부에 올려놓을 수 있다.

[0046] 이와 동시에, 제1 회전롤(17)과 제1 가이드롤(15)은 시계방향으로 회전하고, 또한 언로딩 챔버(30) 내의 제2 가이드롤(35)과 제2 회전롤(37)도 시계방향으로 회전하면서, 상기 컨베이어 벨트(40)를 이동시켜 상기 대상 기관(50a)을 이동시킬 수 있다. 일 예에서, 제1 회전롤(17), 제1 가이드롤(15), 제2 가이드롤(35), 및 제2 회전롤(37) 중 제2 회전롤(37)에만 시계방향의 회전력이 전달되고, 이에 의해 컨베이어 벨트(40)에 걸린 장력은 다른 롤들(17, 15, 35)을 시계방향으로 회전시킬 수 있다.

[0047] 도 5를 참조하면, 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기에서 상기 컨베이어 벨트(40)를 계속 이동시켜, 상기 대상 기관(50a)을 증착 영역(21) 내로 이동시킬 수 있다(기관이동구간 (M_1)). 이 후, 상기 컨베이어 벨트(40) 이동을 중단한 상태에서, 가스 공급라인(12)을 통해 반응가스(12a)를 공급할 수 있다($t_{1b}-t_{2a}$). 반응가스(12a)는 가열에 의해 소정온도를 유지하는 증착영역(21) 내에서 반응하여 대상 기관(50a) 표면 상에 박막으로 증착될 수 있다. 한편, 증착영역(21) 내 적절한 반응가스 농도를 유지하기 위해 가스 배출라인(32)을 통해 잔류 반응가스 일부와 반응후 생성가스(32a)를 배출할 수 있다.

[0048] 구체적으로, 반응가스 공급라인(12)을 통해 전처리 가스(12a)를 공급하여 증착 영역(21) 내에 위치한 대상 기관(50a)을 전처리할 수 있다($t_{1b}-t_{1c}$). 전처리 가스는 불활성 가스, 환원 가스, 혹은 이의 조합일 수 있다. 불활성 가스만 공급되는 경우, 증착 영역(21) 내에 위치한 대상 기관(50a)은 열에 의해 표면 금속 촉매층의 금속 결정이 성장하면서 표면 거칠기가 줄어들고, 이에 따라 후술하는 그래핀 합성시 도메인 크기를 향상시킬 수 있다. 한편, 환원 가스가 독립적으로 혹은 불활성 가스과 함께 공급되는 경우, 증착 영역(21) 내에 위치한 대상 기관(50a)의 표면 금속 촉매층 내에 형성되었던 자연 산화막이 환원 가스와 열에 의해 원래의 순수 금속으로 환원되어, 자연 산화막이 후술하는 그래핀 합성시 오염, 도핑, 결함의 시작점이 되는 것을 막아줄 수 있다. 또한, 환원 가스 공급에 따른 환원성 분위기는 금속의 재결정 온도를 낮추고 재결정 속도를 높이는 효과도 있어서 환원성 분위기가 더 우수한 그래핀 품질을 유도할 수 있다. 특히 Cu, Ni 금속 박막 또는 금속 촉매층이 형성된 기관을 사용한 경우에는, 상온상압의 자연상태에서 만들어진 금속표면의 자연산화막이 단순한 열처리만으로는 없애지기 쉽지 않아서 환원 가스 분위기가 금속의 자연산화막 제거에 특히 유용할 수 있다. 상기 환원 가스로는

수소와 암모니아를 포함하는 혼합가스의 사용이 가능하다. 일 예로서, 반응가스 공급라인(12)을 통해 수소와 불활성 가스(ex. 헬륨, 아르곤)의 조합을 사용할 수 있다. 이 때, 증착 영역(21) 내 열처리 온도는 환원 가스의 분해에 필요한 온도로 600도(°C) 이상일 수 있고, 일 예로서 800~1100도(°C) 사이에서 있을 수 있다.

[0049] 이 후, 가스 공급 라인(12)을 통해 탄소 가스(12a)가 공급될 수 있다($t_{1c}-t_{2a}$). 이 때, 증착 영역(21) 내에 위치한 대상 기관(50a) 상에 그래핀 층이 형성 또는 성장될 수 있다. 탄소 가스는 그래핀 성장 온도와 압력에서 가스상으로 존재 가능한 가스로서, 일 예로서 메탄(CH_4), 에탄(C_2H_6), 에틸렌(C_2H_4), 아세틸렌(C_2H_2), 프로판($CH_3CH_2CH_3$), 프로필렌(C_3H_6), 부탄(C_4H_{10}), 펜탄($CH_3(CH_2)_3CH_3$), 헵텐(C_5H_{10}), 사이클로펜타디엔(C_5H_6), 헥산(C_6H_{14}), 사이클로헥산(C_6H_{12}), 벤젠(C_6H_6), 톨루엔(C_7H_8) 등 탄화수소 가스; 메탄올(CH_3OH), 에탄올(C_2H_5OH), 이소프로판올(C_3H_7OH)과 같은 알코올류; 일산화탄소(CO), 이산화탄소(CO_2)와 같은 산화탄소, 또는 이들 중 둘 이상의 조합을 포함할 수 있다. 아울러 도핑된 그래핀을 합성하고자 할 경우, 상기 탄소 가스와 더불어, 질소 또는 붕소가 함유된 도펀트 가스가 함께 공급될 수 있다. 질소 함유 도펀트 가스로는 암모니아(NH_3), 질소(N_2), 피리딘(C_5H_5N), 다이아진($C_4H_4N_2$), 트라이진($C_3H_3N_3$)이 있을 수 있고, 붕소 함유 도펀트 가스로는 보레인(BH_3), 트리페닐 보레인($C_{18}H_{15}B$)이 있을 수 있다.

[0050] 상기 탄소 가스(12a) 도입에 따른 그래핀의 성장을 위해, 증착 영역(21)은 약 800~1100도(°C) 일 수 있다. 이러한 온도 범위는 탄소 가스가 분해될 수 있고 또한 대상 기관(50a) 혹은 대상 기관 상의 금속 촉매층의 녹는점 이하로 설정될 수 있다. 상기 전처리 온도와 그래핀 성장 온도는 같거나 다를 수 있다. 이들 둘이 다른 온도로 설정되는 경우, 온도 차이를 50도 이하로 설정할 수 있다.

[0051] 한편, 상기 반응 가스(12a)는 반응가스 공급 라인(12)으로부터 유입된 후 로딩 챔버(10) 내에서 확산되어 기관 로딩 홀더(11) 내에 위치하는 반응 대기 기관들(50b)의 표면과 접촉할 수는 있으나, 반응가스 공급라인(12)으로부터 유입되고 증착 영역(21)에 도달하지 못한 반응 가스(12a)는 반응가능한 온도 이하에 있을 수 있어, 상기 반응가스(12a)가 반응 대기 기관들(50b)의 표면과 반응할 수 있는 확률이 매우 적을 수 있다. 따라서, 반응 대기 기관들(50b) 상에 품질이 나쁜 그래핀이 성장될 확률이 매우 적을 수 있다. 대상 기관(50a) 상에 그래핀의 성장이 완료되면, 상기 가스 공급 라인(12)에 위치한 밸브를 닫아, 반응 가스(12a)의 도입을 중단시킬 수 있다(t_{2a}).

[0052] 위에서 설명한, 불활성 가스 공급단계($t_{1a}-t_{1b}$), 전처리 가스 공급단계($t_{1b}-t_{1c}$), 및 탄소 가스 공급단계($t_{1c}-t_{2a}$)는 하나의 기관에 대한 그래핀 성장 단위사이클을 구성할 수 있다. 상기 불활성 가스 공급단계에서 대상 기관(50a)을 기관 로딩 홀더(11)로부터 증착 영역(21)까지 이동시킬 수 있다(기관이동구간 (M_1)). 상기 전처리 가스 공급단계($t_{1b}-t_{1c}$) 및 탄소 가스 공급단계($t_{1c}-t_{2a}$)에서 대상 기관(50a)은 상기 증착 영역(21) 내에서 위치할 수 있다(반응구간 (R_1)). 상기 그래핀 성장 단위 사이클은 후술하는 바와 같이, n장의 대상 기관 상에 그래핀 성장이 완료될 때까지 n회 반복 수행될 수 있다. 다만, n회의 그래핀 성장 단위 사이클들이 진행되는 동안 증착 영역(21)은 상술한 전처리 온도와 그래핀 성장 온도의 범위 내의 온도로 유지될 수 있다.

[0053] 도 6을 참조하면, 가스 공급라인(12)을 통해 불활성 가스를 공급하여 잔류 반응가스 일부와 반응후 생성가스를 가스 배출라인(32)을 통해 퍼지하면서 상기 반응 챔버(20) 내에 불활성 가스 분위기를 만들 수 있다($t_{2a}-t_{2b}$). 불활성 분위기에서 제1 회전롤(17), 제1 가이드롤(15), 제2 가이드롤(35), 및 제2 회전롤(37)을 모두 시계방향으로 회전시켜 상기 컨베이어 벨트(40)를 이동시켜, 상기 대상 기관(50a)을 이동시키되, 대상 기관(50a)은 제2 가이드롤(35) 상부에서 수평이동하여 기관 언로딩 홀더(31) 내로 수용될 수 있다.

[0054] 상기 컨베이어 벨트(40)를 이동시키기 전에, 제1 구동기(19)를 동작시켜 제1 축(18)을 하부로 이동시켜 로딩롤(13)이 기관 로딩 홀더(11) 내에 수용된 대상 기관 즉, 최하단 기관 (50a')의 하부면과 접촉하도록 한 후, 상기 로딩롤(13)을 시계방향(도 3 기준)으로 동작시켜 상기 대상 기관(50a)을 기관 로딩 홀더(11)로부터 빼내어 제1 가이드롤(15)에 의해 가이드된 컨베이어 벨트(40) 상부에 올려놓을 수 있다.

[0055] 이 후, 상기 컨베이어 벨트(40)를 이동시켜 박막 성장이 완료된 대상 기관(50a)을 기관 언로딩 홀더(31) 내로 수용시킴과 동시에, 박막 성장이 되지 않은 대상 기관(50a')을 증착 영역(21) 내부로 이동시킬 수 있다(기관이동구간 (M_2)).

- [0056] 이와 같이, 대상 기관(50a)이 반응 챔버(20) 내에서 증착 영역(21)에 들어가기 전 그리고 증착 영역(21)에서 나온 후에는 반응 챔버(20)는 불활성 분위기로 유지될 수 있다. 반응 챔버(20) 내의 증착 영역(21)에 들어가기 전 영역 그리고 증착 영역(21)에서 나온 후의 영역은 충분한 가열이 이루어지지 않는 영역이고 또한 이 때의 반응 챔버(20)는 불활성 분위기로 유지되므로, 이 영역에 대상 기관(50a)이 있을 때 반응 가스(12a)와 접촉할 수 있는 가능성이 줄어들거나 거의 없으므로, 이 영역에서 품질이 나쁜 그래핀이 생성될 가능성이 매우 낮아지거나 거의 없어질 수 있다. 그 결과, 대상 기관(50a) 상에는 증착 영역(21) 내에서 생성된 매우 우수한 품질의 그래핀 박막 만이 존재할 수 있다.
- [0057] 도 7을 참조하면, 도 3 내지 도 6을 참조하여 설명한 방법을 사용하여 여러 장의 기관들(50c) 상에 그래핀층의 성장을 완료하였다. 이 후, 도 5에서 설명한 바와 유사하게 반응가스(12a)를 공급하여 가열에 의해 소성온도를 유지하는 증착영역(21) 내에서 대상 기관(50a) 표면 상에 박막으로 증착되도록 할 수 있다.
- [0058] 이 과정에서, 증착영역(21) 내에서 가열된 잔류 반응가스 일부와 반응후 생성가스(32a)는 언로딩 챔버(30) 내로 확산될 수 있다. 이 경우, 언로딩 챔버(30) 내에 위치하는 그래핀 성장이 완료된 기관들(50c) 상에 상기 가열된 잔류 반응가스가 접촉할 수 있고, 이 때에는 잔류 반응가스로부터 생성되는 탄소 동소체로 인해 품질이 나쁜 그래핀이 성장될 위험이 있다. 이를 방지하기 위해, 상기 증착 영역(21)과 상기 언로딩 챔버(30) 사이의 상기 반응 챔버(20) 내에 가스 흡착제(25)를 배치시켜, 잔류 반응 가스들을 흡수할 수 있다. 이 때 흡수되는 잔류 반응 가스들은 탄소 가스일 수 있다. 이를 위해, 흡착제는 다공성 물질을 구비하는 것으로, 다공성 물질은 활성탄, 알루미늄, 또는 제올라이트일 수 있다.
- [0059] 상기 그래핀 성장 단위 사이클을 n번 반복 수행하여 n장의 대상 기관 상에 그래핀 성장을 완료시키고, 마지막 n번째 기관을 진공상태에서 기관 언로딩 홀더(31) 내로 수용시킬 수 있다(기관이동구간 (M_{n+1})).
- [0060] 이와 동시에 혹은 이 후, 가열기 동작을 중단하고 냉각기를 가동하여 반응 챔버(20)를 냉각시킬 수 있다(t_M-t_E). 이 후, 언로딩 챔버(30)를 열어 박막 성장이 완료된 기관들을 수용하는 기관 언로딩 홀더(31)를 수득할 수 있다. 또한, 제1 회전롤(17)에 구동력이 전달하여 제1 회전롤(17)은 반시계방향으로 회전하고 이에 따라 컨베이어 벨트(40)가 제2 회전롤(37)로부터 풀려 제1 회전롤(17)에 다시 감겨 다음 증착을 준비할 수 있다.
- [0061] 위에서는 기관이 기관 로딩 챔버(10)에서 반응챔버(20)를 거쳐 기관 언로딩 챔버(30)로 수득되는 것을 설명하였으나, 이에 한정되지 않고 반응챔버(20)를 거친 기관은 다시 기관 로딩 챔버(10) 내로 회귀하여 상기 기관 로딩 홀더(11) 내의 원래 위치로 회귀할 수도 있다. 이 경우, 기관 언로딩 챔버(30) 내에는 기관 언로딩 홀더(31)를 구비하지 않고 회전롤(37) 등을 수용하는 역할만 수행하므로, 롤 챔버로 명명할 수 있다.
- [0062] 이를 위해, 증착 영역(21) 내에서 대상 기관(50a) 상에 그래핀 성장이 완료된 후, 제1 회전롤(17)에 구동력이 전달하여 제1 회전롤(17)을 반시계방향으로 회전시키고 이에 따라 컨베이어 벨트(40)를 제2 회전롤(37)로부터 풀려 제1 회전롤(17)에 감기도록 하면서, 상기 그래핀이 성장된 기관을 다시 기관 로딩 챔버(10)의 제1 가이드롤(15) 상부로 이동시킨 후, 로딩롤(13)을 반시계 방향으로 동작시켜 상기 기관을 제1 가이드롤(15) 상부로부터 넘겨받아, 기관 로딩 홀더(11) 내에 다시 회귀시킬 수 있다. 이러한 동작을 반복 진행하면, 기관 로딩 홀더(11) 내에 박막성장이 완료된 기관들이 채워질 수 있고, 이 기관 로딩 홀더(11)를 외부로 수득할 수 있다.
- [0064] 도 9는 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면을 나타낸 개략도이다. 본 실시예에 따른 그래핀 제조장치는 후술하는 것을 제외하고는 도 1 내지 도 8을 참조하여 설명한 그래핀 제조장치와 유사하다.
- [0065] 도 9를 참조하면, 언로딩 챔버(30) 내에 기관 언로딩 홀더(31)과 더불어서 박막이 성장된 날개의 기관을 상기 컨베이어 벨트로부터 기관 언로딩 홀더(31)로 전달하는 언로딩수단이 배치될 수 있다. 상기 언로딩수단은 언로딩롤(33)일 수 있다. 상기 기관 언로딩 홀더(31)과 상기 언로딩롤(33)은 도 2 및 도 4에 도시된 기관 로딩 홀더(11)과 로딩롤(13)과 같은 배치관계 및 구조를 갖거나, 혹은 후술하는 도 11 및 도 13에 도시된 기관 로딩 홀더(11)과 로딩롤(13)과 같은 배치관계 및 구조를 가질 수 있다.
- [0066] 상기 언로딩롤(33)은 증착영역(21)을 거치면서 표면 상에 박막이 증착된 대상 기관(50a)을 제2 가이드롤(35) 상부로부터 넘겨받아, 상기 대상 기관(50a)이 기관 언로딩 홀더(31) 내에 정렬도가 우수하게 수용되는 것을 도와 줄 수 있다.
- [0068] 도 10 및 도 12는 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면 및 동작방법 중 일부를 순차적으로 나타낸 개략도들이다. 도 11 및 도 13은 각각 도 10 및 도 12의 기관 로딩 홀더 및 로딩롤을 하부에서 바라본 사시도들로서, 도 10에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤은 도 11의 II'-II를 따라 취해진 단면에 해당할 수

있고, 도 12에 도시된 기관 로딩 홀더 및 로딩롤은 도 13의 II'-II를 따라 취해진 단면에 해당할 수 있다. 다만, 도 11에서는 기관을 도시하지 않았고, 도 13에서는 하나의 기관만을 도시하였다. 본 실시예에 따른 그래핀 제조장치는 후술하는 것을 제외하고는 도 1 내지 도 8을 참조하여 설명한 그래핀 제조장치와 유사하다.

[0069] 도 10 및 도 11을 참조하면, 로딩롤(13) 및 언로딩롤(33)은 각각 로딩 챔버(10)의 바닥부와 언로딩 챔버(30)의 바닥부에 고정되도록 설치될 수 있다. 이에 따라, 기관 로딩 홀더 (11)는 상하부로 수직이동할 때 로딩롤(13)을 내부에 수용할 수 있는 개구부(11a)를 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 기관 로딩 홀더 내 각 지지판(11')은 그에 의해 지지된 기관이 상기 로딩롤(13)에 접하도록 개구부를 구비할 수 있다. 상기 로딩롤(13)은 로딩 챔버(10)의 바닥부에 고정되어 있으므로, 상기 개구부(11a)는 상기 기관 로딩 홀더 (11)의 하부면 내에 형성될 수 있다. 기관 언로딩 홀더 (31) 또한 상하부로 수직이동할 때 언로딩롤(33)을 내부에 수용할 수 있는 개구부(미도시)를 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 기관 언로딩 홀더(31) 내 각 지지판은 상기 언로딩롤을 수용하는 개구부를 구비할 수 있다. 상기 개구부(11a)의 형태는 도시된 바에 한정되지 않고, 기관 로딩 홀더 (11)가 상하부로 수직이동할 때 로딩롤(13)을 내부에 수용할 수 있는 다양한 형태로 구현될 수 있다.

[0070] 도 12 및 도 13을 참조하면, 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기에서 제1 구동기(19)를 동작시켜 제1 축(18)을 하부로 이동시켜 로딩롤(13)이 기관 로딩 홀더(11) 내에 수용된 대상 기관 즉, 최하단 기관 (50a)의 하부면과 접하도록 한 후, 상기 로딩롤(13)을 시계방향(도 12 기준)으로 동작시켜 상기 대상 기관(50a)을 기관 로딩 홀더 (11)로부터 빼내어 제1 가이드롤(15)에 의해 가이드된 컨베이어 벨트(40) 상부에 올려놓을 수 있다.

[0072] 도 14 내지 도 17은 본 발명의 다른 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 단면 및 동작방법 중 일부를 순차적으로 나타낸 개략도들이다. 본 실시예에 따른 그래핀 제조장치는 후술하는 것을 제외하고는 도 1 내지 도 8을 참조하여 설명한 그래핀 제조장치 및 동작방법과 유사하다.

[0073] 도 14를 참조하면, 로딩 챔버(10)는 차단판(14)을 구비할 수 있다. 상기 로딩 챔버(10)는 상기 차단판(14)에 의해 외부에서 기관 로딩 홀더(11)를 로딩하기 위한 로딩 공간, 일 예로서 상기 차단판(14) 상부의 공간과 기관 로딩 홀더(11) 내에 수용된 기관들(50)이 반응을 대기하는 대기 공간, 일 예로서 상기 차단판(14) 하부의 공간을 구분할 수 있다. 그러나, 상기 로딩 챔버(10) 내의 상기 로딩 공간과 상기 대기 공간은 상기 차단판(14)에 의해 상하부로 나뉘어진 것에 한정되지 않고, 상기 대기 공간의 앞 또는 뒤, 혹은 왼쪽에 상기 로딩 공간이 마련될 수도 있다.

[0074] 마찬가지로, 언로딩 챔버(30) 또한 차단판(34)을 구비할 수 있다. 상기 언로딩 챔버(30) 또한 상기 차단판(34)에 의해 기관 언로딩 홀더(31) 내에 수용된 반응이 종료된 기관들(50)이 언로딩을 대기하는 대기 공간, 일 예로서 상기 차단판(34) 하부의 공간과 외부로 기관 언로딩 홀더(31)를 언로딩하기 위한 언로딩 공간, 일 예로서 상기 차단판(34) 상부의 공간을 구분할 수 있다. 그러나, 상기 언로딩 챔버(10) 내의 상기 로딩 공간과 상기 대기 공간은 상기 차단판(34)에 의해 상하부로 나뉘어진 것에 한정되지 않고, 상기 대기 공간의 앞 또는 뒤, 혹은 오른쪽에 상기 로딩 공간이 마련될 수도 있다.

[0075] 상기 차단판들(14, 34)은 게이트 밸브들에 구비된 것일 수 있다. 상기 로딩 챔버(10)는 상기 로딩 공간을 선택적으로 오픈하는 로딩 도어(미도시)를 구비하고, 상기 언로딩 챔버(30)는 상기 언로딩 공간을 선택적으로 오픈하는 언로딩 도어(미도시)를 구비할 수 있다.

[0076] 또한, 로딩 챔버(10)과 언로딩 챔버(30) 사이에 배치된 반응 챔버(20) 외에, 냉각 챔버(70)을 더 구비할 수 있다. 상기 냉각 챔버(70)는 상기 반응 챔버(20) 대비 하부에 위치하면서, 상기 반응 챔버(20)와 실질적으로 평행한 방향으로 배치될 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0077] 컨베이어 벨트(40)는 상기 냉각 챔버(70) 내에서 상기 냉각 챔버(70)를 따라 연장되어, 상기 로딩 챔버(10), 상기 반응 챔버(20), 상기 언로딩 챔버(30), 및 상기 냉각 챔버(70) 내에서 패쇄 루프를 형성할 수 있다. 이 경우, 제1 회전롤(17)과 제2 회전롤(37) 중 적어도 어느 하나에 동력이 전달되어, 상기 컨베이어 벨트(40)는 풀림 후 되감김 과정없이 한 방향 예를 들어, 시계방향으로만 이동할 수 있다.

[0078] 상기 냉각 챔버(70)는 상기 로딩 챔버(10) 및 상기 언로딩 챔버(30) 각각에 대해 이격하여 배치된 냉각 영역(71)을 구비할 수 있다. 상기 냉각 영역(71)을 둘러싸는 냉각장치(80)가 배치될 수 있고, 상기 냉각 영역(71)은 냉각장치(80)에 의해 정의될 수 있다. 상기 냉각장치(80) 내에 냉각기 일 예로서, 냉각수 라인이 배치될 수 있다.

[0079] 이에 더하여, 상기 냉각 영역(71)과 상기 로딩 챔버(10) 사이 그리고 상기 냉각 영역(71)과 상기 언로딩 챔버(30) 사이의 상기 냉각 챔버(70) 내에 격벽(73)이 배치될 수 있다. 상기 격벽(73)은 반응가스 혹은 반응후 생

성가스가 상기 냉각 영역(71) 내로 확산되는 것을 최소화하며, 또한 상기 냉각 영역(71)과 이에 접하는 다른 영역들 사이의 온도 차이를 크게 할 수 있는 방열벽일 수 있다. 다만, 상기 격벽(73)은 상기 컨베이어 벨트(40)의 진행을 허용하는 관통홀을 구비할 수 있다.

[0080] 도 14 내지 도 18을 참조하여, 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 제조장치의 동작방법을 순차적으로 설명한다.

[0081] 도 14를 참조하면, 로딩 챔버(10)와 언로딩 챔버(30) 내에서 차단판들(14, 34)이 닫혀 있는 상태에서, 로딩 챔버(10)의 로딩 공간으로 연결되는 로딩 도어(미도시)를 열어 로딩 공간 내에 다수의 기관들(50)을 수용하는 기관 로딩 홀더(11)를 배치하고, 언로딩 챔버(30)의 언로딩 공간으로 연결되는 언로딩 도어(미도시)를 열어 언로딩 공간 내에 비어있는 기관 언로딩 홀더(31)를 배치할 수 있다. 이 때, 로딩 챔버(10)와 언로딩 챔버(30)의 대기공간들, 반응 챔버(20), 및 냉각 챔버(70)는 차단판들(14, 34)에 의해 외부와 차단되므로, 낮은 압력 혹은 진공 상태를 유지할 수 있다. 이에 따라, 추후 진행되는 진공 펌핑 과정에 소요되는 시간 및 에너지를 줄일 수 있다.

[0082] 도 15를 참조하면, 상기 로딩 도어와 언로딩 도어를 닫아 장치 내부를 외부와 차단한 후, 상기 차단판들(14, 34)을 오픈할 수 있다. 상기 차단판들(14, 34)을 오픈하기 전에 상기 로딩 공간 및 상기 언로딩 공간을 진공 상태로 만들 수 있다. 이를 위해, 가스 공급라인(12)과 상기 가스 배출라인(32)에 진공 펌프를 연결할 수 있다. 이와는 달리, 상기 차단판들(14, 34)을 오픈한 후, 도 3을 참조하여 설명한 바와 같이, 내부를 진공 상태 혹은 불활성 가스 분위기로 만들 수 있다.

[0083] 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기에서 제1 구동기(19)를 동작시켜 제1 축(18)을 하부로 이동시켜 로딩롤(13)이 기관 로딩 홀더(11) 내에 수용된 대상 기관 (50) 즉, 최하단 기관의 하부면과 접하도록 할 수 있다. 또한, 제2 구동기(39)를 동작시켜 제2 축(38)을 하부로 이동시켜 기관 언로딩 홀더(31)가 그의 최상단 기관 수용부에 기관을 수용할 수 있도록 배치할 수 있다.

[0084] 도 16를 참조하면, 도 3, 도 5 내지 도 8을 참조하여 설명한 바와 같이, 로딩된 모든 기관의 표면 상에 박막을 성장시킬 수 있고, 표면 상에 박막이 성장된 모든 기관들은 기관 언로딩 홀더(31) 내에 수용될 수 있다. 로딩된 모든 기관의 표면 상에 박막을 성장시키는 과정에서, 상기 냉각 영역(71)은 상기 증착 영역(21) 대비 저온 상태를 유지하여 상기 증착 영역(21)을 지나면서 가열된 컨베이어 벨트(40)을 냉각시킬 수 있다.

[0085] 도 17을 참조하면, 모든 기관 상에 박막 성장이 완료된 후, 진공상태 혹은 불활성 가스 분위기에서 제1 구동기(19)를 동작시켜 제1 축(18)을 상부로 이동시켜 비어 있는 기관 로딩 홀더(11)를 로딩 공간 내로 위치시키고, 또한, 제2 구동기(39)를 동작시켜 제2 축(38)을 상부로 이동시켜 기관 언로딩 홀더(31)를 언로딩 공간 내로 위치시킨 후, 차단판들(14, 34)을 닫을 수 있다. 차단판들(14, 34)이 닫혀 있는 상태에서, 외부에서 언로딩 챔버(30)의 언로딩 공간으로 연결되는 언로딩 도어(미도시)를 열어 언로딩 공간으로부터 박막 성장이 완료된 기관들을 수용하는 기관 언로딩 홀더(31)를 수득할 수 있다. 한편, 외부로부터 로딩 챔버(10)의 로딩 공간으로 연결되는 로딩 도어(미도시)를 열어 비어있는 기관 로딩 홀더(11)를 다음 공정을 위해 다수의 기관들을 수용하는 기관 로딩 홀더(11)로 교환할 수도 있다.

[0086] 이 때, 로딩 챔버(10)와 언로딩 챔버(30)의 대기공간들, 반응 챔버(20), 및 냉각 챔버(70)는 차단판들(14, 34)에 의해 외부와 차단되므로, 낮은 압력의 불활성 가스 분위기 혹은 진공 상태를 유지할 수 있다.

[0088] 이하, 본 발명의 이해를 돕기 위하여 바람직한 실험예(example)를 제시한다. 다만, 하기의 실험예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것일 뿐, 본 발명이 하기의 실험예에 의해 한정되는 것은 아니다.

[0090] <그래핀 제조예>

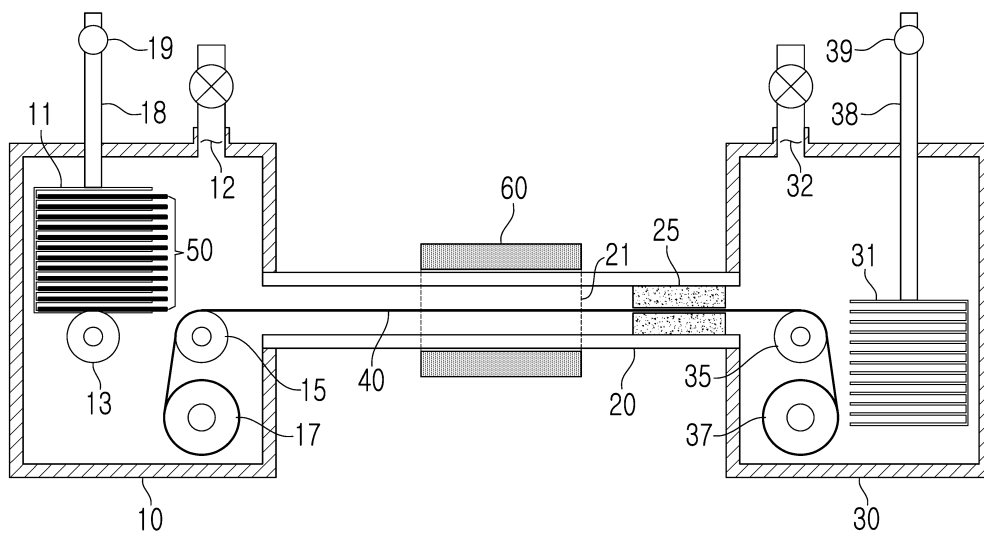
[0091] 도 1에 도시된 바와 같은 그래핀 제조장치에서 물리브텐 호일을 컨베이어 벨트로 사용하고, 구리 호일을 기관으로 사용하였다. 장치의 반응 챔버 내부 압력을 0.01mbar의 진공상태로 만들고, 반응 챔버 중앙 온도를 900도까지 올렸다. 이 후, 컨베이어 벨트를 분당 0.5m의 속도로 이동시켜 기관이 반응 챔버 중앙에 갔을 때 멈추고, 1분 동안 수소분위기에서 열처리 후, 1분 동안 이소부탄 분위기에서 그래핀을 합성하였다. 합성후 부탄 가스 공급을 중단하고 약 1분 동안 베이스 압력에 도달한 후, 불활성 가스 분위기에서 그래핀이 합성된 기관을 반대쪽의 기관 언로딩 홀더에 이송하였다. 이상 상기의 과정을 반복적으로 수행하여, 1시간에 10장 이상의 그래핀이 합성된 기관을 생산할 수 있었다.

[0093] 도 18은 그래핀 제조예에 따라 얻어진 그래핀 박막이 성장된 기관들을 촬영한 사진이다.

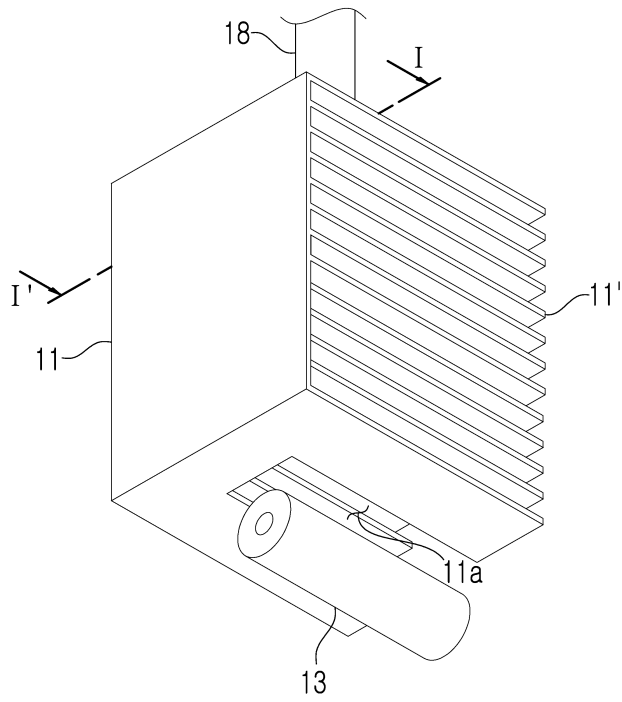
- [0094] 도 18을 참조하면, 총 12 개의 기관들 상에 그래핀 박막이 성장된 것을 알 수 있는데, 이들 12 개의 기관들은 상기 그래핀 제조예에 기술된 과정을 1시간 동안 반복 수행하여 얻은 것들이다.
- [0096] 도 19는 그래핀 제조예에 따라 성장된 그래핀 박막의 서로 다른 세 지점에 대한 라만 스펙트럼(a)과 광학현미경 이미지(b)를 나타낸다. 여기서 나타낸 그래핀 박막은 도 18에서 촬영한 기관들 중 어느 하나의 기관 상에 성장된 것이다.
- [0097] 도 19(a)를 참조하면, 그래핀 제조예에 따라 성장된 그래핀 박막은 라만 스펙트럼에서 G 피크의 세기가 D 피크의 세기에 비해 매우 큰 것을 볼 때 그래핀의 품질이 매우 우수한 것을 알 수 있다. D 피크의 세기에 대한 G 피크의 세기의 비가 그래핀 박막의 서로 다른 세 지점에서 거의 유사하게 나타나는 것을 볼 때, 그래핀 박막이 매우 균일하게 성장한 것을 또한 알 수 있다.
- [0098] 도 19(b)를 참조하면, 그래핀 제조예에 따라 성장된 그래핀 박막에 대한 광학현미경 이미지도 비교적 깨끗하게 나타난 것을 볼 때 성장된 그래핀의 품질이 균일하고 우수한 것을 알 수 있다.
- [0099] 이와 같이, 1시간 동안 총 12장의 기관 상에 그래핀 박막을 우수한 품질로 성장시킬 수 있음을 알 수 있다.
- [0101] 이상, 본 발명을 바람직한 실시예를 들어 상세하게 설명하였으나, 본 발명은 상기 실시예에 한정되지 않고, 본 발명의 기술적 사상 및 범위 내에서 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의하여 여러가지 변형 및 변경이 가능하다.

도면

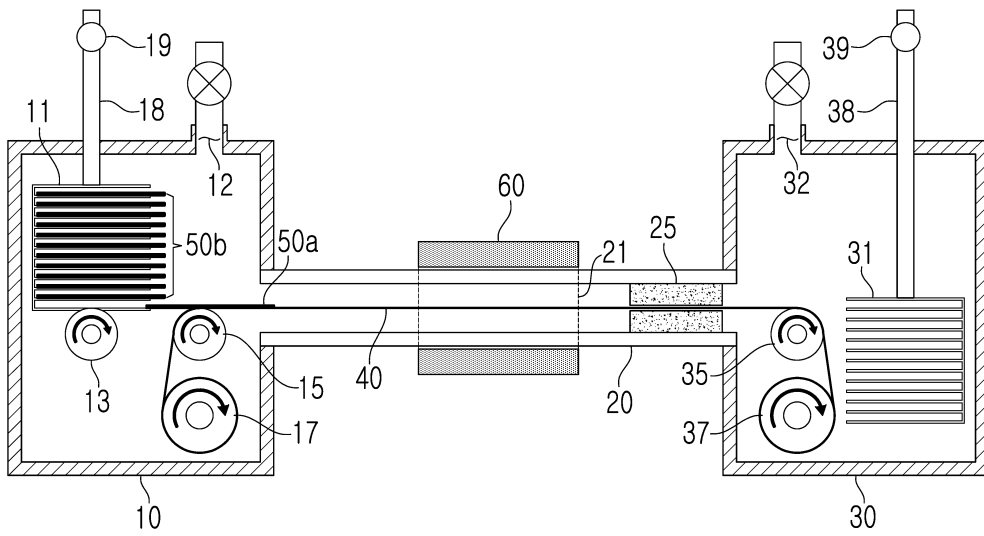
도면1



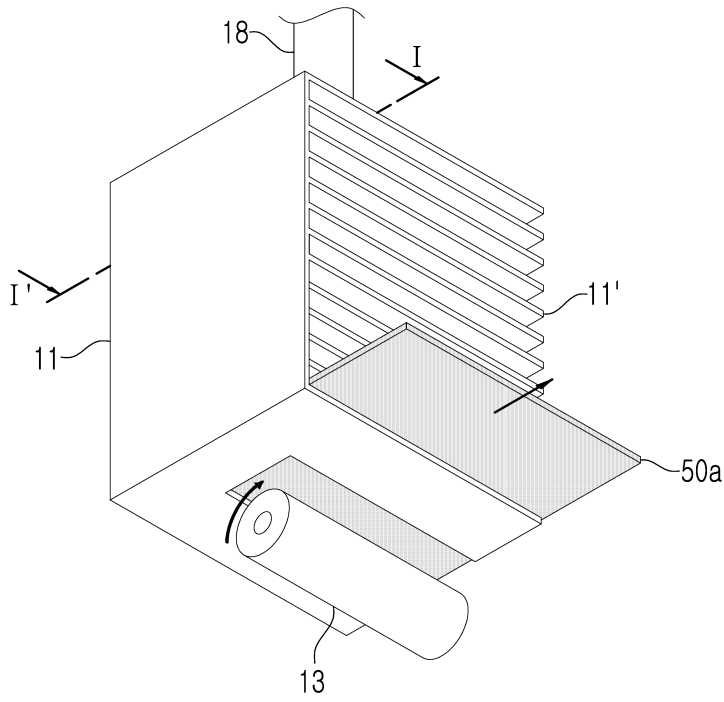
도면2



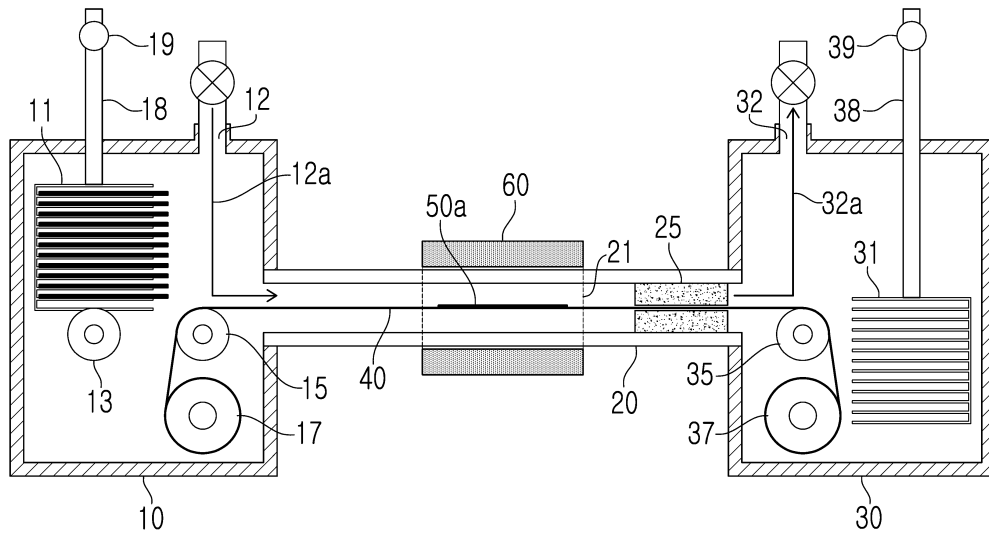
도면3



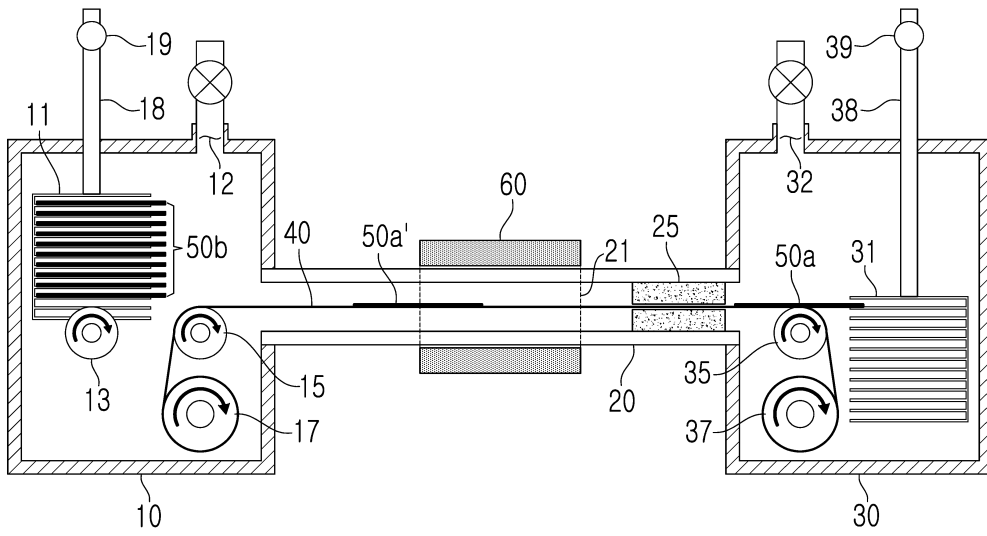
도면4



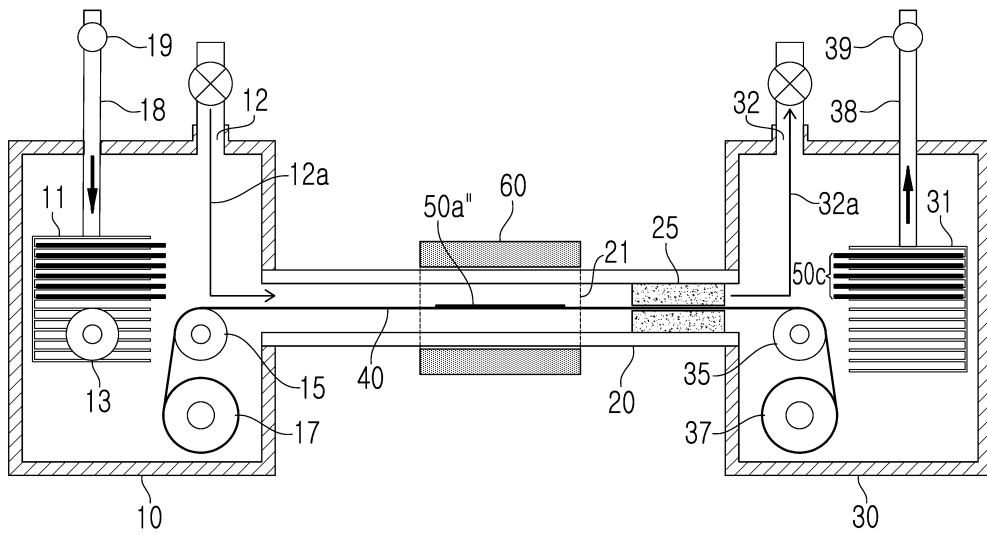
도면5



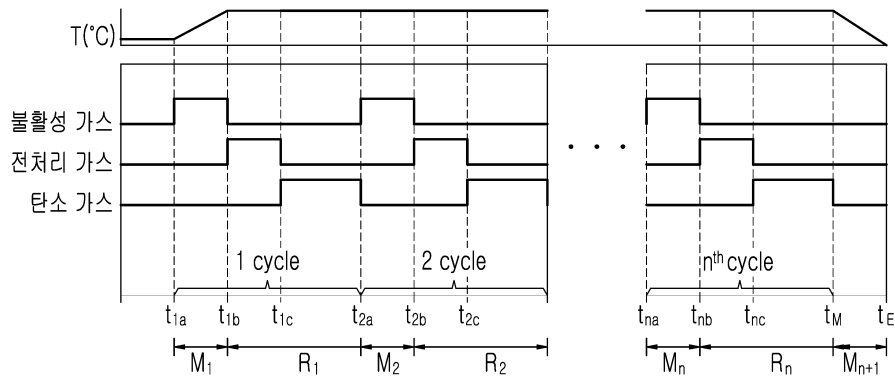
도면6



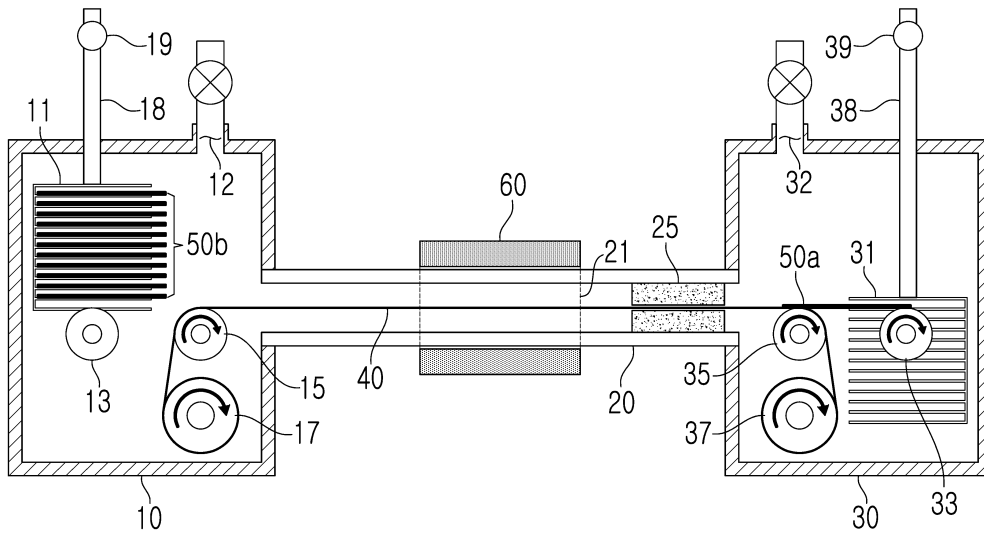
도면7



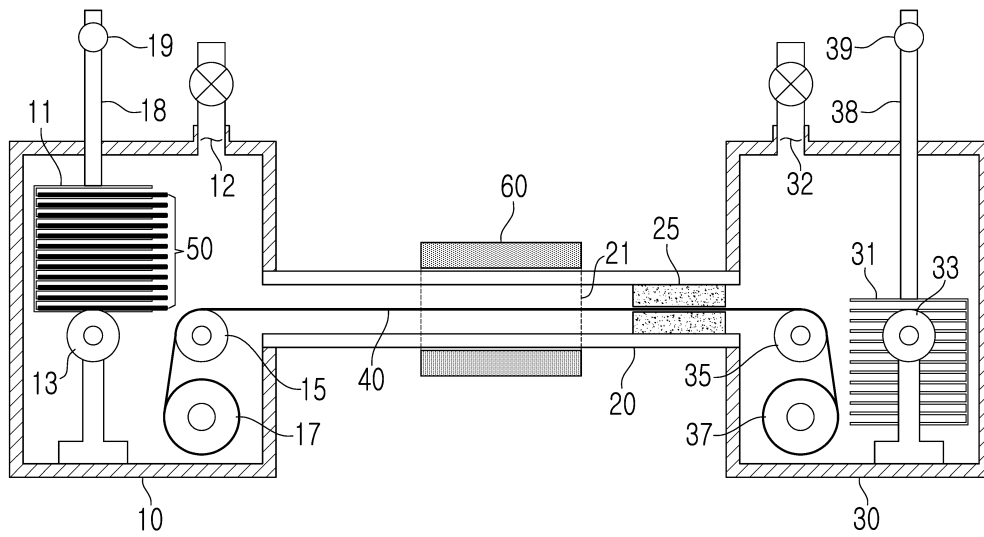
도면8



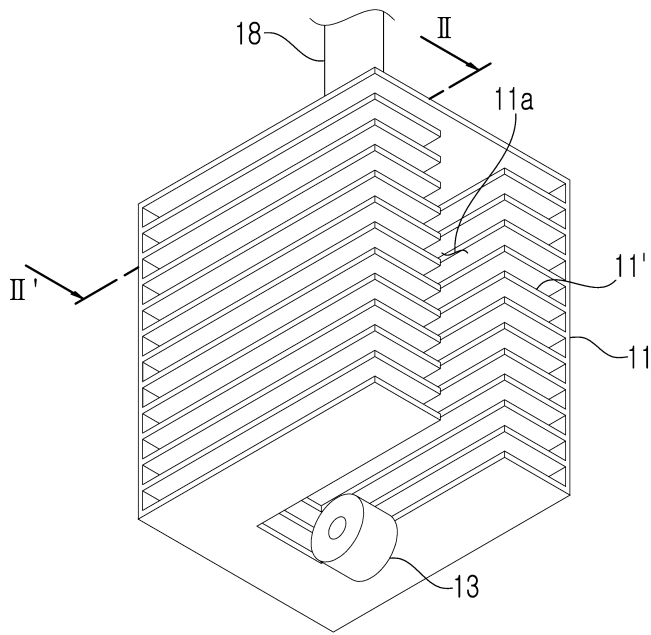
도면9



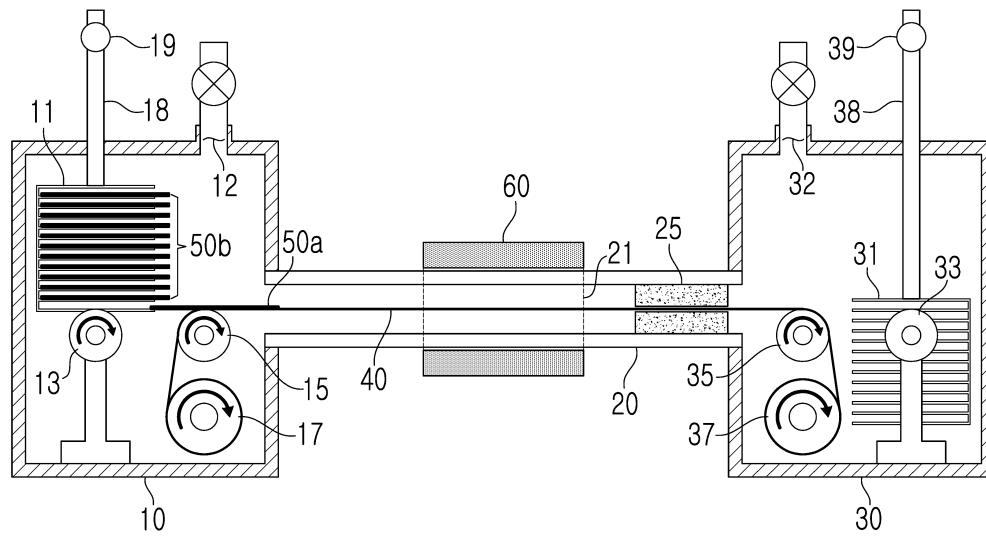
도면10



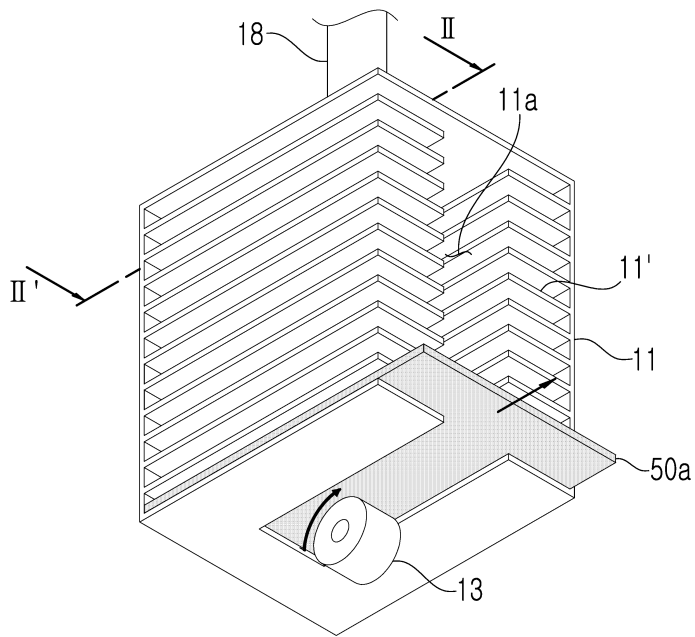
도면11



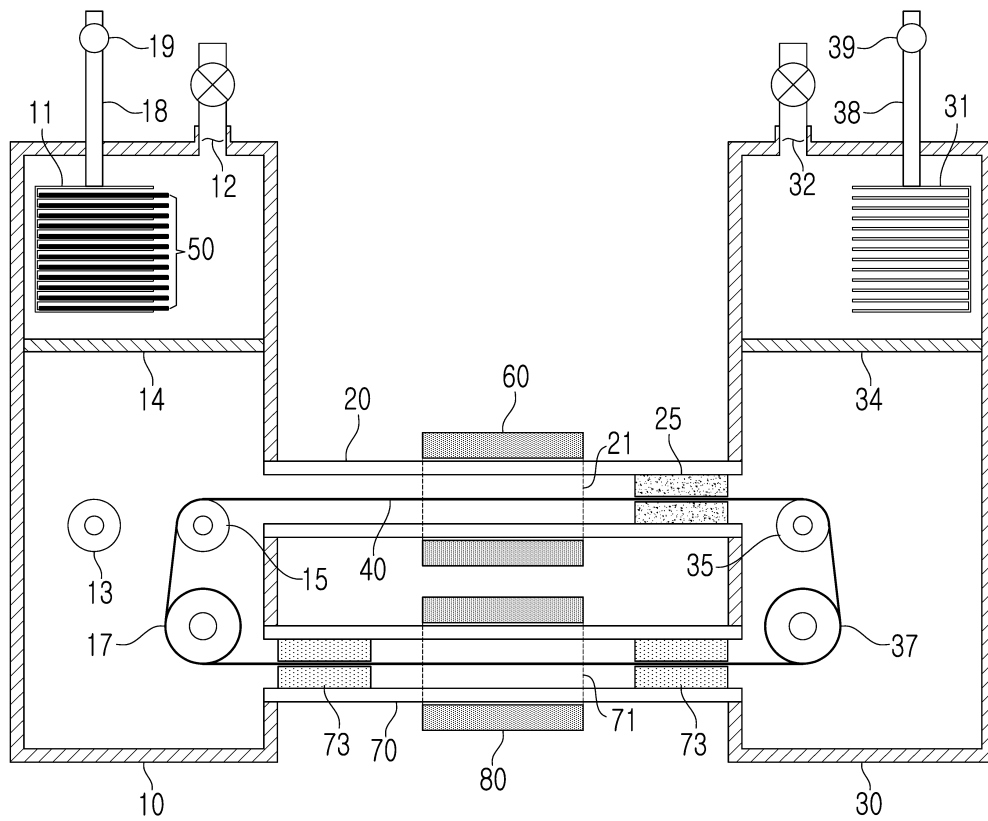
도면12



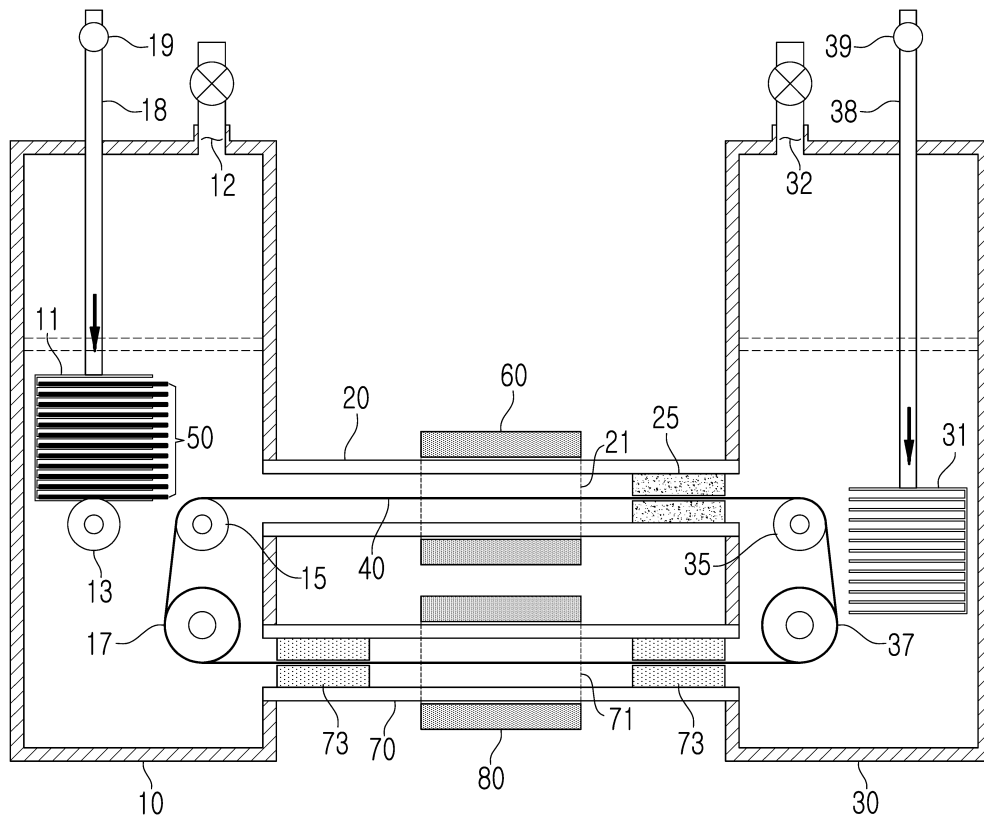
도면13



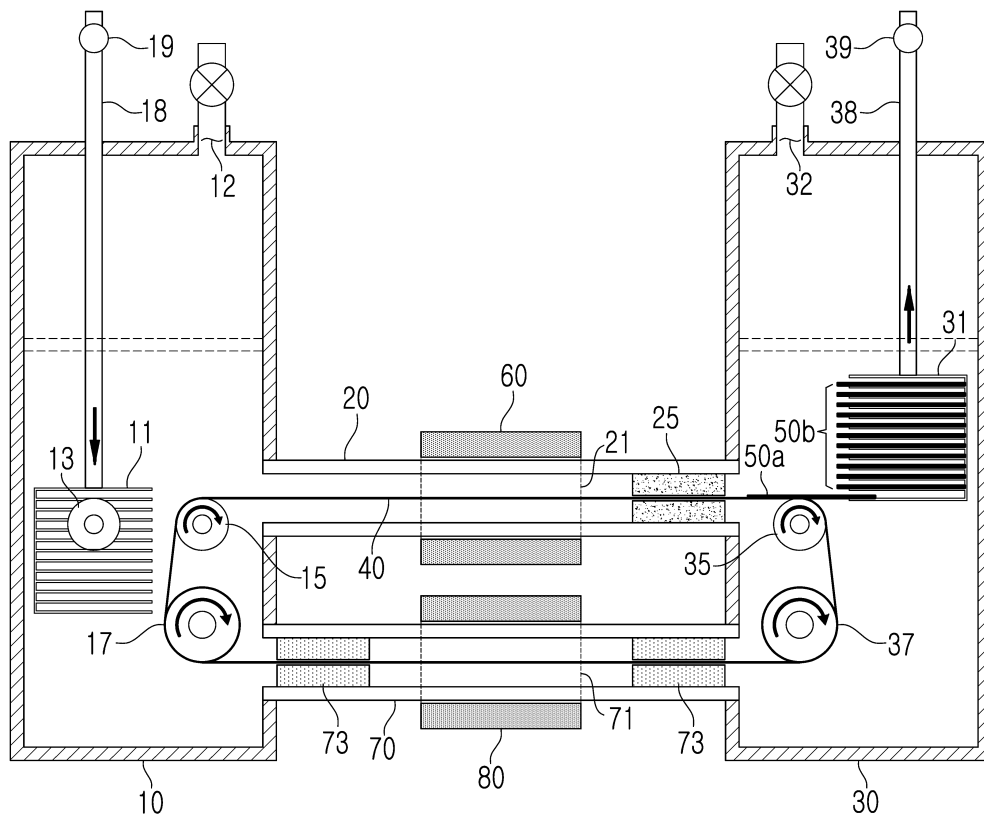
도면14



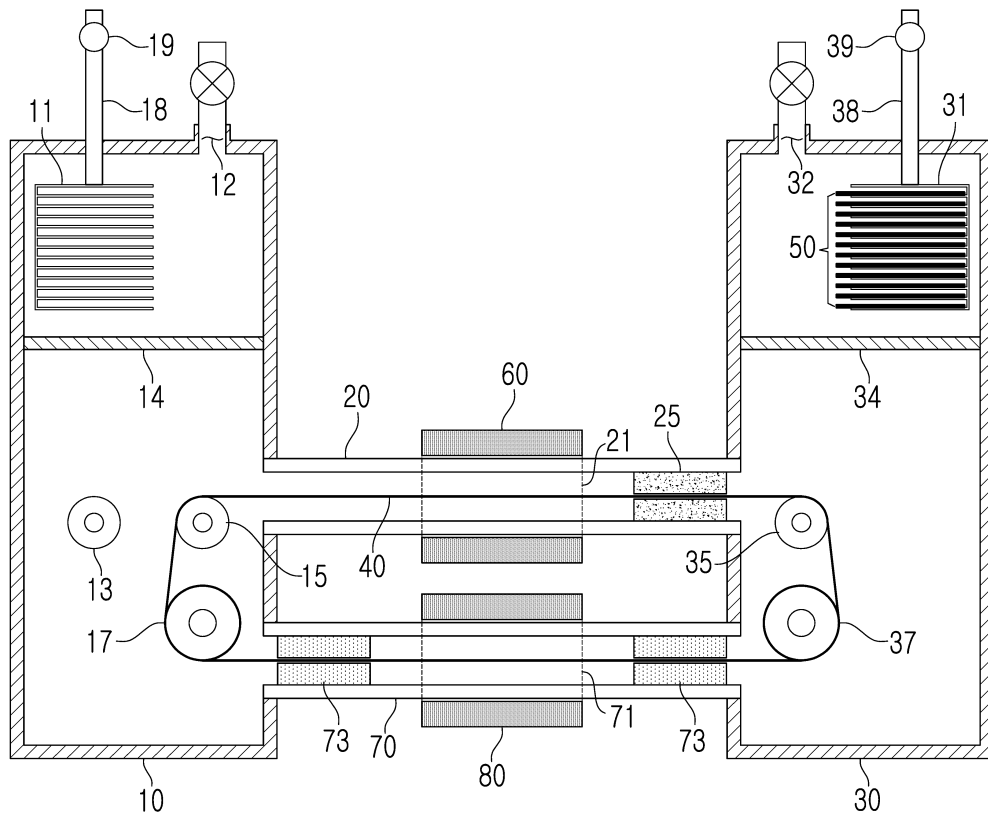
도면15



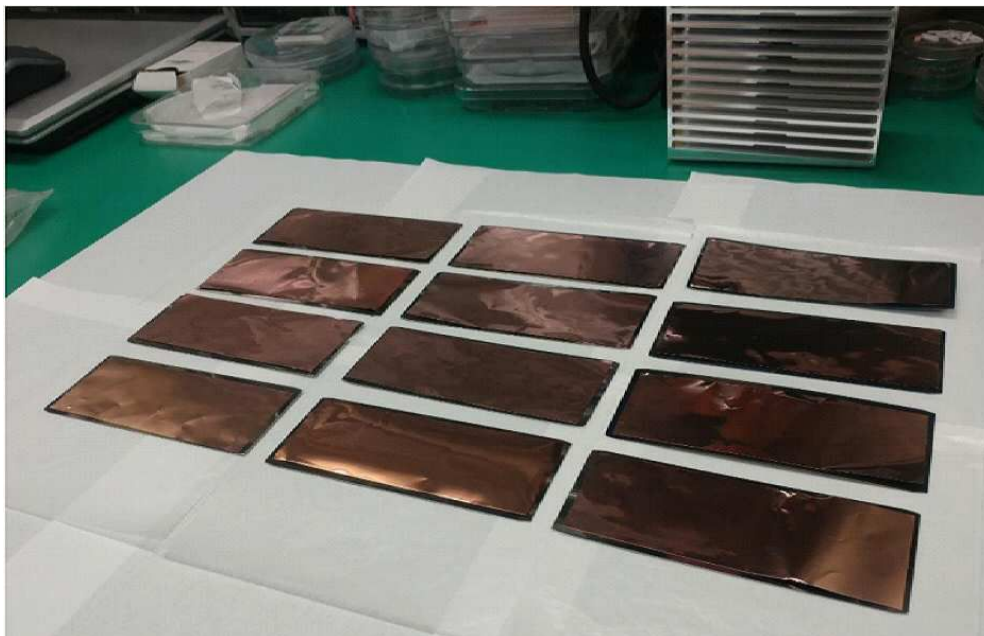
도면16



도면17



도면18



도면19

