



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년03월07일
 (11) 등록번호 10-1371286
 (24) 등록일자 2014년03월03일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
 B05C 1/08 (2006.01) B05C 9/14 (2006.01)
 B05D 7/14 (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2010-0140029
 (22) 출원일자 2010년12월31일
 심사청구일자 2010년12월31일
 (65) 공개번호 10-2011-0092207
 (43) 공개일자 2011년08월17일
 (30) 우선권주장
 1020100011437 2010년02월08일 대한민국(KR)
 (56) 선행기술조사문헌
 KR1020090026568 A*
 W02009122139 A1*
 KR1020070104612 A
 KR1020090120034 A
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
 그래핀스퀘어 주식회사
 서울특별시 강남구 봉은사로72길 18, 301(삼성동)
 (72) 발명자
홍병희
 서울특별시 강남구 봉은사로72길 18, 202호 (삼성동)
김형근
 경기도 화성시 팔탄면 고주골길 46
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
 특허법인엠에이피에스

전체 청구항 수 : 총 29 항

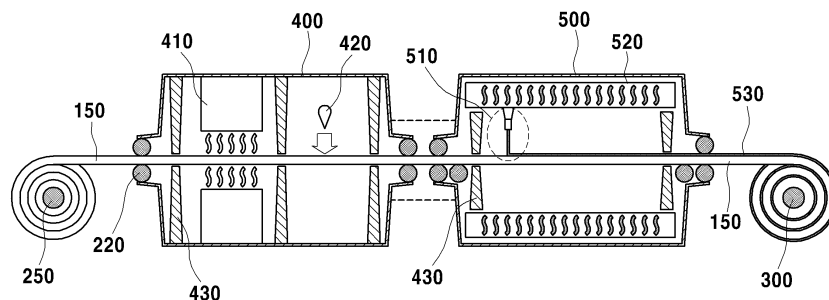
심사관 : 김종규

(54) 발명의 명칭 **그래핀 롤투를 코팅 장치 및 이를 이용한 그래핀 롤투를 코팅 방법**

(57) 요약

본원은 금속 표면에 그래핀 롤투를 코팅 방법 및 그래핀 롤투를 코팅 장치에 관한 것으로서, 연속공정인 롤투를 코팅 방식에 기반하는 그래핀 롤투를 코팅 장치 및 상기 장치를 이용하는 그래핀 롤투를 코팅 방법을 제공한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

김영진

서울특별시 강남구 언주로30길 57, 타워펠리스 E동
2506호 (도곡동)

최재봉

경기도 용인시 수지구 신봉1로 112-2, LG빌리지5차
아파트 514동 102호 (신봉동)

강준모

경기도 수원시 장안구 서부로 2066, 성균관대학교
제2종합연구동 83510호 (천천동)

배수강

경기도 수원시 장안구 서부로 2066, 성균관대학교
제2종합연구동 83602호 (천천동)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 2009-0000000

부처명 지식경제부

연구사업명 산학협력중심대학육성사업

연구과제명 Graphene 나노 복합구조체를 이용한 휴대전화용 key-pad 설계 기초연구

기여율 1/2

주관기관 성균관대학교산학협력단

연구기간 2009.08.01 ~ 2010.03.31

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 2009-0093248

부처명 교육과학기술부

연구사업명 선도연구센터육성사업

연구과제명 변환형 소자 구현을위한공정 및 집적화 기술 연구

기여율 1/2

주관기관 성균관대학교산학협력단

연구기간 2009.09.01 ~ 2010.02.28

특허청구의 범위

청구항 1

금속부재를 롤투롤 방식으로 공급하기 위한 제 1 롤러;

상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재의 표면 처리를 위한 전처리부;

상기 전처리된 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하기 위한 그래핀 합성부; 및

상기 그래핀 합성부를 통과한 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투롤 방식으로 연속적으로 회수하기 위한 제 2 롤러;

를 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 상기 제 2 롤러로 회수하기 전에 냉각하기 위한, 냉각부를 추가 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 3

제 2 항에 있어서,

상기 제 1 롤러, 상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부, 상기 냉각부 및 상기 제 2 롤러는 수직 또는 수평으로 배치되는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 전처리부는 상기 제 1 롤러를 통해 공급되는 금속부재 표면 상에 플라즈마, 레이저, 예열 및 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택되는 공정이 수행되는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 금속부재는 금속관, 금속판, 금속 시트, 금속와이어, 또는 금속 호일을 포함하는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 전처리부 및 상기 그래핀 합성부는 각각 챔버 형태를 가지는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 7

제 6 항에 있어서,

상기 챔버 형태의 전처리부 및 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 격벽을 추가 포함하는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 8

제 6 항에 있어서,

상기 챔버 형태의 전처리부의 입구, 또는 출구, 또는 입구 및 출구에 롤러를 추가 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 9

제 6 항에 있어서,

상기 챔버 형태의 그래핀 합성부의 입구, 또는 출구, 또는 입구 및 출구에 롤러를 추가 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 10

제 6 항에 있어서,

상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 한 개 또는 복수개의 가스 노즐을 포함하는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 11

제 6 항에 있어서,

상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 온도 조절이 가능한 열원을 추가 포함하는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 12

제 2 항에 있어서,

상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부 및 상기 냉각부는 각각 튜브 형태를 갖는 것으로서 서로 연통되도록 배치되는 것인, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 13

제 12 항에 있어서,

상기 제 1 롤러와 상기 전처리부 사이에 형성된 제 1 가스 도입부, 상기 전처리부와 상기 그래핀 합성부 사이에 형성된 제 2 가스 도입부, 상기 그래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부, 및 상기 냉각부와 상기 제 2 롤러 사이에 형성된 제 1 가스 배출부를 추가 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치.

청구항 14

제 12 항에 있어서,

상기 제 1 롤러는 상기 금속부재 내부로 가스를 공급하기 위한 제 4 가스 도입부가 구비되어 있으며, 상기 제 2

롤러는 상기 금속부재 내부로부터 가스를 제거하기 위한 제 2 가스 배출부가 구비되어 있는 것인, 그래핀 롤투를 코팅 장치.

청구항 15

제 12 항에 있어서,

상기 전처리부 및 상기 그래핀 합성부에는 온도 조절이 가능한 가열 자켓이 각각 구비되어 있고, 상기 냉각부에는 온도 조절이 가능한 냉각 자켓이 구비되어 있는, 그래핀 롤투를 코팅 장치.

청구항 16

제 1 항 내지 제 15 항 중 어느 한 항에 따른 그래핀 롤투를 코팅 장치를 이용하는 그래핀 롤투를 코팅 방법으로서,

롤투를 방식에 의하여 제 1 롤러로부터 금속부재를 전처리부로 공급하고;

상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재를 전처리부에서 표면 처리하고;

상기 전처리된 금속부재를 그래핀 합성부로 이동시켜 상기 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하고; 및

상기 그래핀 합성부를 통과한 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투를 방식으로 제 2 롤러에 감아 회수하는 것;

을 포함하는, 그래핀 롤투를 코팅 방법.

청구항 17

제 16 항에 있어서,

상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 상기 제 2 롤러에 감아 회수하기 전에, 냉각부로 이동시켜 냉각시키는 것을 추가 포함하는, 그래핀 롤투를 코팅 방법.

청구항 18

제 16 항에 있어서,

상기 금속부재는 Ni, Co, Fe, Pt, Au, Al, Cr, Cu, Mg, Mn, Mo, Rh, Si, Ta, Ti, W, U, V, Zr, 황동(brass), 청동(bronze), 백동(white brass), 스테인레스 스틸(stainless steel), Ge 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것을 포함하는 것인, 그래핀 롤투를 코팅 방법.

청구항 19

제 16 항에 있어서,

상기 금속부재는 그의 표면에 형성된 그래핀 성장용 금속 촉매층을 포함하는 것인, 그래핀 롤투를 코팅 방법.

청구항 20

제 19 항에 있어서,

상기 그래핀 성장용 금속 촉매층은 Ni, Co, Fe, Pt, Au, Al, Cr, Cu, Mg, Mn, Mo, Rh, Si, Ta, Ti, W, U, V,

Zr, 황동(brass), 청동(bronze), 백동(white brass), 스테인레스 스틸(stainless steel), Ge 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것을 포함하는 것인, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 21

제 16 항에 있어서,

캠버 형태의 상기 그래핀 합성부 내의 가스 노즐을 통해 탄소 소스를 포함하는 반응 가스를 주입하여 상기 금속부재 표면에 화학기상증착법에 의하여 그래핀이 합성되어 동시에 코팅되는 것인, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 22

제 16 항에 있어서,

상기 제 1 롤러와 상기 전처리부 사이에 형성된 제 1 가스 도입부를 통하여 환원 가스가 주입되는, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 23

제 16 항에 있어서,

상기 전처리부와 상기 그래핀 합성부 사이에 형성된 제 2 가스 도입부를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스를 주입하여 상기 그래핀 합성부에서 상기 금속부재 표면에 화학 기상 증착법에 의하여 그래핀이 합성되어 코팅되는 것인, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 24

제 16 항에 있어서,

상기 제 1 롤러에 구비된 제 4 가스 도입부를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스가 상기 금속부재 내부로 주입되어, 상기 그래핀 합성부 통과 시 추가로 상기 금속부재의 내부 표면에 그래핀이 합성되어 코팅되는 것인, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 25

제 17 항에 있어서,

상기 그래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부를 통하여 퍼지용 가스가 주입되는, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 26

제 17 항에 있어서,

상기 냉각부와 상기 제 2 롤러 사이에 형성된 제 1 가스 배출부를 통하여 상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부 및 상기 냉각부를 통과한 가스가 배출되는, 그래핀 몰투몰 코팅 방법.

청구항 27

제 17 항에 있어서,

상기 제 2 롤러에 의하여 회수된 그래핀이 코팅된 금속부재 표면에 그래핀 성장용 금속 촉매층을 형성하고; 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층이 형성된 그래핀이 코팅된 금속부재에 상기 그래핀 물투물 코팅장치를 이용하여 추가로 그래핀을 합성과 코팅하는 것: 을 포함하는 공정을 1 회 이상 수행하여 상기 금속부재에 다층 그래핀을 코팅하는 것을 포함하는, 그래핀 물투물 코팅 방법.

청구항 28

제 16 항에 따른 방법에 의하여 형성되고, 그래핀이 상기 금속부재의 내부 및 외부에 코팅된 것인, 그래핀이 코팅된 금속부재.

청구항 29

제 28 항에 있어서,

상기 금속부재는 전열관 또는 전열관으로 사용되는 것인, 그래핀이 코팅된 금속부재.

명세서

기술분야

[0001] 본원은 그래핀 물투물 코팅 장치, 이를 이용한 그래핀 물투물 코팅 방법, 및 그래핀이 코팅된 금속부재에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 금속관 또는 금속판은 산업적으로 다양한 용도로서 이용된다. 특히, 금속관 또는 금속판은 전열관 또는 전열판으로서 이용될 수 있다. 전열관(heat-pipe)이란, 열을 효율적으로 전하기 위한 파이프로서, 본체(本體)의 재료는 구리, 스테인리스강, 세라믹스, 텅스텐 등이 사용되고, 안벽의 재료로는 다공질의 파이버 등이 사용된다. 내부의 휘발성 물질로는 메탄올, 아세톤, 물, 수은 등이 사용된다.

[0003] 상기 전열관은 폐열회수장치, 공기조화 및 냉동 시스템, 전자부품 및 장치의 냉각, 태양열 집열기, 전동기의 냉각, 국부적인 난방 및 열제어, 제빙 및 제설, 원자로의 냉각 계통, 인공위성 및 비행체의 열제어 등에 사용할 수 있다.

[0004] 이러한 예를 통해, 전열관은 고밀도의 열을 효과적으로 이송시키면서 운전 소요동력을 절감함과 동시에 장치의 증량과 부피를 큰 폭으로 줄일 수 있다는 장점을 보여 준다.

[0005] 최근 들어 에너지 절약, 대체에너지의 개발 및 활용, 그리고 전자제품과 전기장치의 냉각 및 소형화 등과 관련하여 전열관에 대한 국내 수요가 더욱 증가하고 있다.

[0006] 이에 따라, 열전달 효율이 우수하고 신뢰도가 높은 전열관을 보다 낮은 비용으로 제조하는 방법에 대한 필요성이 대두하고 있다. 이러한 목적을 위하여 그래핀과 같은 물질을 금속관 또는 금속판 등의 금속부재의 표면에 코팅하여 열전달 효율 및 신뢰도를 향상시키는 것에 대하여 아직 보고된 바 없으며, 더욱이 그래핀과 같은 물질을 금속관 또는 금속판 등의 금속부재의 표면에 코팅하는 연속적 공정 및 이를 위한 장치에 대하여도 아직 보고된 바 없다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 상기한 문제점을 해결하기 위하여, 본원은 연속공정인 물투물 코팅 방식에 기반하는 그래핀 물투물 코팅 장치,

및 이를 이용한 그래핀 롤투롤 코팅 방법을 제공하고자 한다. 그러나, 본원이 해결하고자 하는 과제는 이상에서 언급한 과제에 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 과제들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

- [0008] 상기와 같은 목적을 달성하기 위하여, 본원의 일 측면은, 금속부재를 롤투롤 방식으로 공급하기 위한 제 1 롤러; 상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재의 표면 처리를 위한 전처리부; 상기 전처리된 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하기 위한 그래핀 합성부; 및 상기 그래핀 합성부를 통과한 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투롤 방식으로 회수하기 위한 제 2 롤러: 를 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 제공한다.
- [0009] 본원의 다른 측면은, 상기 장치를 이용한 그래핀 롤투롤 코팅 방법으로서, 롤투롤 방식에 의하여 제 1 롤러로부터 금속부재를 전처리부로 공급하고; 상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재를 전처리부에서 표면 처리하고; 상기 전처리된 금속부재를 그래핀 합성부로 이동시켜 상기 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하고; 및 상기 그래핀 합성부를 통과한 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투롤 방식으로 제 2 롤러에 감아 회수하는 것: 을 포함하는, 그래핀 롤투롤 코팅 방법을 제공한다.
- [0010] 본원에 또 다른 측면은, 상기 그래핀을 롤투롤 코팅하는 방법을 이용하여 표면에 그래핀이 코팅된 금속부재를 제공한다.

발명의 효과

- [0011] 본원의 그래핀 롤투롤 코팅 장치는 챔버 형태 또는 튜브 형태를 이루면서, 상기 챔버 또는 튜브가 각각 순차적으로 연통되어 안정적인 연속 공정을 제공할 수 있으며, 금속부재의 어느 일면 또는 양면에 양질의 그래핀을 저비용으로 대량 코팅할 수 있다.
- [0012] 또한, 상기한 본원의 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 이용하여 제조된, 표면에 그래핀 코팅된 금속부재는 내화학/내부식성이 탁월하고, 유체 저항을 개선할 수 있으며 열전달 효율이 향상되고, 고효율 발열(방열) 특성 및 전기전도도를 개선할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0013] 도 1은 본원의 일 구현예에 따른 수평 배열된 챔버 형태의 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 보여 주는 단면도이다.
- 도 2는 본원의 일 구현예에 따른 수직 배열된 챔버 형태의 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 보여 주는 단면도이다.
- 도 3은 본원의 일 구현예에 따른 튜브 형태의 그래핀 롤투롤 코팅 장치의 개략도이다.
- 도 4는 본원의 일 실시예에 따른 수직 배열된 튜브 형태의 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 보여 주는 개략도이다.
- 도 5는 본원의 일 실시예에 따른 수평 배열된 튜브 형태의 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 보여 주는 도면이다.
- 도 6은 본원의 일 실시예에 따른 그래핀이 코팅된 금속부재를 보여 주는 도면 및 상기 금속부재 상에 그래핀 코팅 유무를 보여주는 라만 스펙트럼을 이용한 분석 결과이다.
- 도 7은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 전열관 내 흐르는 유체 저항을 평가하기 위한 유체의 접촉각(contact angle) 분석 결과이다.
- 도 8은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 유체 및 대기 분위기 하에서 그래핀 필름이 코팅된 금속층 표면의 내화학/내부식성을 평가한 결과이다.
- 도 9는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 전열관에 대한 고온 유체(기체 포함)의 열전도 평가 결과 및 이를 위한 실험 장치이다.
- 도 10은 본원의 일 실시예에 따른 전열관 또는 전열관의 응용에 들을 보여 주는 사진이다.

도 11은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu/Ni 와이어의 표면 및 직경변화를 전자현미경으로 관찰한 사진이다.

도 12는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 금속와이어의 비저항을 측정하는 방법 및 측정기구를 나타낸 그림이다.

도 13은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu/Ni 와이어의 직경에 따른 비저항을 나타낸 그래프이다.

도 14는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu 와이어의 표면 및 직경변화를 전자현미경으로 관찰한 사진이다.

도 15는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu 와이어의 직경에 따른 비저항을 나타낸 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0014] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본원이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본원의 구현예 및 실시예를 상세히 설명한다.
- [0015] 그러나 본원은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 구현예 및 실시예에 한정되지 않는다. 그리고 도면에서 본원을 명확하게 설명하기 위해서 설명과 관계없는 부분은 생략하였으며, 명세서 전체를 통하여 유사한 부분에 대해서는 유사한 도면 부호를 붙였다.
- [0016] 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.
- [0017] 본 명세서에서 사용되는 정도의 용어 "약", "실질적으로" 등은 언급된 의미에 고유한 제조 및 물질 허용오차가 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.
- [0018] 본 명세서에서 사용되는 "그래핀"이라는 용어는 복수개의 탄소원자들이 서로 공유결합으로 연결되어 폴리시클릭 방향족 분자를 형성하는 그래핀이 층 또는 시트 형태를 형성한 것으로서, 상기 공유결합으로 연결된 탄소원자들은 기본 반복단위로서 6 원환을 형성하나, 5 원환 및/또는 7 원환을 더 포함하는 것도 가능하다. 따라서 상기 그래핀은 서로 공유 결합된 탄소원자들(통상 sp^2 결합)의 단일층으로서 보이게 된다. 상기 그래핀은 다양한 구조를 가질 수 있으며, 이와 같은 구조는 그래핀 내에 포함될 수 있는 5 원환 및/또는 7 원환의 함량에 따라 달라질 수 있다. 상기 그래핀은 상술한 바와 같은 그래핀의 단일층으로 이루어질 수 있으나, 이들이 여러 개 서로 적층되어 복수층을 형성하는 것도 가능하며, 통상 상기 그래핀의 측면 말단부는 수소원자로 포화될 수 있다.
- [0019] 본 명세서에서 사용되는 용어 "금속부재"는 당업계에서 통상적으로 사용되는 금속 소재의 부재를 의미한다. 예를 들어, 금속관, 금속판, 금속 시트, 금속와이어, 또는 금속 호일 등을 포함할 수 있으며, 상기 금속부재의 형상 및/또는 구조로서 당업계에 공지된 것을 특별히 제한 없이 사용할 수 있다.
- [0020] 본원의 일 측면에 따른 그래핀 롤투롤 코팅 장치는 금속부재를 롤투롤 방식으로 공급하기 위한 제 1 롤러; 상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재의 표면 처리를 위한 전처리부; 상기 전처리된 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하기 위한 그래핀 합성부; 및 상기 그래핀 합성부를 통과한 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투롤 방식으로 회수하기 위한 제 2 롤러: 를 포함할 수 있다. 상기 그래핀 롤투롤 코팅 장치는, 금속부재의 가공법인 압출, 인발 및 압연 공정의 후속 공정으로 수행될 수 있으며, 상기 장치를 이용하여 상기 금속부재의 표면에 그래핀 코팅 공정을 수행할 수 있다.
- [0021] 예시적 구현예에서, 상기 전처리부는 상기 제 1 롤러를 통해 공급되는 금속부재 표면 상에 플라즈마, 레이저, 예열 및 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택되는 공정을 수행하기 위한 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0022] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재는 금속관, 금속판, 금속 시트, 금속와이어, 또는 금속 호일을 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0023] 예시적 구현예에서, 상기 전처리부 및 상기 그래핀 합성부는 각각 챔버 형태를 가지는 것을 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

- [0024] 예시적 구현예에서, 상기 챔버 형태의 전처리부 및 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 격벽을 추가 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0025] 예시적 구현예에서, 상기 챔버 형태의 전처리부 및/또는 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부의 입구 및/또는 출구에 롤러를 추가 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 일 구현예에 있어서, 상기 롤러는 냉각 롤러일 수 있다.
- [0026] 예시적 구현예에서, 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 한 개 또는 복수개의 가스 노즐을 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예시적 구현예에서, 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부는 온도 조절이 가능한 열원을 추가 포함할 수 있다.
- [0027] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 상기 제 2 롤러로 회수하기 전에 냉각하기 위한, 냉각부를 추가 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 일 구현예에서, 상기 제 1 롤러, 상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부, 상기 냉각부 및 상기 제 2 롤러는 수직 또는 수평으로 배치되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0028] 예시적 구현예에서, 상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부 및 상기 냉각부는 각각 튜브 형태를 갖는 것으로서 서로 연통되도록 배치되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0029] 예시적 구현예에서, 상기 제 1 롤러와 상기 전처리부 사이에 형성된 제 1 가스 도입부, 상기 전처리부와 상기 그래핀 합성부 사이에 형성된 제 2 가스 도입부, 상기 그래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부, 및 상기 냉각부와 상기 제 2 롤러 사이에 형성된 제 1 가스 배출부를 추가 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0030] 예시적 구현예에서, 상기 제 1 롤러는 상기 금속부재 내부로 가스를 공급하기 위한 제 4 가스 도입부가 구비되어 있으며, 상기 제 2 롤러는 상기 금속부재 내부로부터 가스를 제거하기 위한 제 2 가스 배출부가 구비되어 있는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0031] 예시적 구현예에서, 상기 전처리부 및 상기 그래핀 합성부에는 온도 조절이 가능한 가열 자켓이 각각 구비되어 있고, 상기 냉각부에는 온도 조절이 가능한 냉각 자켓이 구비되어 있을 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0032] 이하, 본원의 그래핀 롤투를 코팅 장치, 그래핀 롤투를 코팅 방법, 및 그래핀이 코팅된 금속부재에 대한 구현예 및 실시예에 대하여 도면을 이용하여 자세히 설명한다. 그러나, 본원이 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0033] 본원의 그래핀 롤투를 코팅 장치(700)는 금속부재(150)를 롤투를 방식으로 공급하기 위한 제 1 롤러(250); 상기 제 1 롤러를 통해 공급된 금속부재의 표면 처리를 위한 전처리부(400); 상기 전처리된 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하기 위한 그래핀 합성부(500); 및 상기 그래핀 합성부를 통과한 그래핀이 코팅된 금속부재를 롤투를 방식으로 회수하기 위한 제 2 롤러(300): 를 포함할 수 있다(도 1 내지 도 5 참조). 일 구현예로, 상기 그래핀 롤투를 코팅 장치는 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 상기 제 2 롤러로 회수하기 전에 냉각하기 위한 냉각부(600)를 추가 포함할 수 있다. 상기 금속부재(150)는, 상기 제 1 롤러(250)와 상기 제 2 롤러(300)의 구동에 의하여 상기 제 1 롤러(250)로부터 상기 전처리부(400), 상기 그래핀 합성부(500) 및 필요한 경우 상기 냉각부(600)를 순차적으로 통과하면서 그래핀이 코팅되어 상기 제 2 롤러(300)에 의하여 회수된다.
- [0034] 본원의 롤투를 코팅 장치는 수직 또는 수평으로 배치할 수 있다(도 1 내지 도 5 참조). 상기 금속부재가 고온에서 변형 및/또는 휨 현상을 최소화하거나 방지하고 열의 구배를 안정적으로 유지시키기 위해 상기 장치를 수직(도 2, 3, 4 참조)으로 배치하는 것이 효과적일 수 있으며, 상기 수직으로 배치된 롤투를 코팅 장치는 금속부재 상에 그래핀 성장용 금속 촉매를 증착하여 그래핀을 코팅하는 경우, 상기 촉매층의 대면적 결정화가 가능하여 보다 용이하게 상기 금속부재 상에 그래핀을 코팅할 수 있다. 또한 상기 장치를 수평(도 1, 5 참조)으로 배치하는 경우 특별한 지그 제작을 통해 안정적으로 이송 가능하게 하여 상기 그래핀 롤투를 코팅 장치를 작동시킬 수 있다.
- [0035] 전처리부(400)에서는 상기 제 1 롤러를 통해 공급되는 금속부재 표면 상에 플라즈마, 레이저, 예열 및 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택되는 공정이 수행될 수 있다. 예를 들어, 필요에 따라 플라즈마 공정, 레이저 공정, 또는 예열 공정을 순차적으로 진행시킬 수 있다.

- [0036] 상기 플라즈마 공정 및 상기 레이저 공정은 그래핀이 합성될 금속부재 또는 금속촉매 상에 불순물을 제거하고 금속부재의 조직을 치밀하게 하며, 조직의 크기를 성장시키기 위해 사용될 수 있다. 이 경우, 상기 플라즈마 공정 및/또는 상기 레이저 공정에 의해 제거된 불순물의 이동을 방지하기 위하여, 상기 전처리부 내의 플라즈마 공정과 레이저 공정 사이에 격벽(430)을 설치할 수 있다. 또한 상기 전처리부의 입구 및/또는 출구에 외부 공기와 유출입을 차단하기 위하여 격벽이 추가로 형성되어 있을 수 있다.
- [0037] 상기 예열 공정은 상기 그래핀 합성부에서 그래핀의 합성 및/또는 코팅 전에, 화학기상증착이 용이하게 일어날 수 있는 온도로 미리 금속부재를 가열하는 공정을 말한다. 상기 예열 공정은, 보다 바람직하게는, 상기 그래핀 합성부에서 고온 화학기상증착법을 사용하는 경우에 사용될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 예열 공정에 의해 상기 금속부재는 상기 그래핀 합성부에서 화학기상증착이 용이하게 일어날 수 있는 온도와 동일하게 또는 그보다 낮은 온도로 예열될 수 있다. 상기 온도는, 예를 들어 약 300℃ 내지 약 2000℃, 또는 약 300℃ 내지 약 1000℃, 또는 약 300℃ 내지 약 500℃를 포함한다.
- [0038] 도 1, 2 를 참조하면, 본원의 일 구현예에 따른 롤투롤 코팅장치에 있어서, 상기 전처리부(400), 상기 그래핀 합성부(500)는 각각 챔버 형태를 가지는 것일 수 있다. 상기 챔버형태의 롤투롤 코팅장치는 금속부재(150), 보다 바람직하게는, 금속판, 금속 시트, 또는 금속 호일 등의 표면 상에 그래핀을 코팅하는 경우에 사용될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0039] 또한, 본원의 그래핀 롤투롤 코팅 장치는 안정적인 연속공정을 수행하기 위해 코팅공정 동안 저압 또는 진공 분위기를 유지할 수 있다. 이를 위해, 전처리부(400), 그래핀 합성부(500)는 각각 순차적으로 연통되는 챔버 형태를 이룰 수 있다.
- [0040] 그래핀 합성부(500)는 상기 전처리된 금속부재의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅시킨다. 상기 그래핀의 합성을 위한 방법으로는 당업계에서 통상적으로 사용되는 화학기상증착법(chemical vapor deposition) 이라던 제한 없이 사용될 수 있으며, 예를 들어, 열 화학기상증착법(thermal chemical vapor deposition; T-CVD), 급속 열처리 화학기상증착법(rapid thermal chemical vapor deposition; RTCVD), 플라즈마 화학기상증착법(plasma enhanced chemical vapor deposition; PECVD), 유도전류플라즈마 화학기상증착법(inductively coupled plasma enhanced chemical vapor deposition; ICPVD), 유기금속 화학기상증착법(metal organic chemical vapor deposition; MOCVD), 저압화학증기증착(low pressure chemical vapor deposition; LPCVD), 상압화학증기증착(atmospheric pressure chemical vapor deposition; APCVD) 또는 Laser heating 등을 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0041] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀의 합성과 코팅은 그래핀 합성부 내의 가스 노즐(510)을 통하여 탄소 소스를 포함하는 반응 가스가 주입되어, 상기 그래핀 합성부에서 상기 금속부재(150) 표면에 화학기상증착법에 의하여 그래핀이 합성되어 코팅되는 것일 수 있다. 상기 탄소 소스를 포함하는 반응가스는 상기 탄소 소스만으로 존재하거나, 또는 헬륨, 아르곤 등과 같은 불활성 기체와 상기 탄소 소스가 함께 존재할 수도 있다. 또한, 상기 탄소 소스를 포함하는 반응가스는 상기 탄소 소스와 더불어 수소를 포함할 수 있다. 수소는 상기 기재의 표면을 깨끗하게 유지하여 기상 반응을 제어하기 위하여 사용될 수 있으며, 용기 전체 부피의 1 내지 40 부피% 로 사용 가능하고, 바람직하게는 10 내지 30 부피%이며, 더욱 바람직하게는 15 내지 25 부피% 이다.
- [0042] 상기 탄소 소스는 일산화탄소, 이산화탄소, 메탄, 에탄, 에틸렌, 에탄올, 아세틸렌, 프로판, 부탄, 부타디엔, 펜탄, 펜텐, 사이클로펜타디엔, 헥산, 사이클로헥산, 벤젠, 톨루엔, 폴리머 등과 같은 탄소 소스를 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0043] 상기 탄소 소스를 포함하는 반응 가스를 기상으로 상기 그래핀 합성부에 공급하면서, 온도를 제어할 수 있는 열원(520)에 의해 열처리 하면 상기 탄소 소스에 존재하는 탄소 성분들이 결합하여 상기 금속부재(150) 표면에서 6 각형의 판상 구조를 형성하면서 그래핀이 합성된다. 상기 열처리에 의해 반응 온도는 약 300℃ 내지 약 2000℃ 정도로 유지된다. 상기 언급한 방법에 의해 제조되는 그래핀은 단층 그래핀 또는 다층 그래핀일 수 있다.
- [0044] 그래핀 합성부 내의 가스 노즐(510)은 한 개 또는 복수개일 수 있으며, 필요에 따라 상기 그래핀 합성부 내에 상기 가스 노즐을 복수개 설치하여 그래핀의 합성 정도를 조절할 수 있다. 또한 상기 가스 노즐이 챔버 내의 일 측면, 예를 들어 상기 챔버 내의 윗면 또는 하면에만 존재하는 경우, 상기 가스 노즐이 형성되어 있는 일 측면에만 그래핀이 합성 및 코팅될 수 있으나, 상기 가스 노즐을 양 측면에 모두 설치하여, 상기 금속부재의 양 측면에 모두 그래핀을 합성 및 코팅할 수 있다.
- [0045] 상기 챔버 형태의 전처리부(400) 및 상기 챔버 형태의 그래핀 합성부(500)의 입구 및/또는 출구에 롤러(220)를

추가 포함할 수 있다. 상기 롤러는 고온에서 상기 금속부재가 변형 및/또는 휨 현상을 최소화하거나 방지하고 열의 구배를 안정적으로 유지하는 기능을 할 수 있다. 또한 상기 롤러는 상기 금속부재를 냉각시키는 냉각 롤러 일 수 있다. 이 경우, 상기 각각의 챔버의 출구부에 냉각 롤러를 위치시킴으로써, 부수적으로 냉각부를 설치하지 않고, 상기 금속부재를 원하는 온도까지 냉각시킬 수 있다.

[0046] 도 3 내지 도 5 는 본원의 또 다른 구현예에 따른 롤투롤 코팅장치로서, 상기 롤투롤 코팅장치는 하나의 튜브 형태일 수 있다. 상기 튜브 형태의 롤투롤 코팅장치는 금속부재, 보다 바람직하게는, 금속관, 금속와이어의 그 래핀 코팅에 사용될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0047] 상기 롤투롤 코팅장치는 각각의 튜브 형태의 챔버로서 순차적으로 연통되는 전처리부(400), 그 래핀 합성부(500) 및 냉각부(600)를 구비할 수 있으며, 상기 전처리부, 그 래핀 합성부 및 냉각부는 각각 그 외면에 가열 자켓 (100) 또는 냉각 자켓(200)을 구비함으로써 온도를 제어할 수 있다.

[0048] 또한 상기 롤투롤 코팅 장치는 금속관의 내벽 표면에도 그 래핀을 합성과 동시에 코팅하고 금속관이 감겨 있는 롤러들의 구동 방향과 관계없이 가스를 안정적으로 공급할 수 있는 가스 도입부를 구비하는 롤러를 포함할 수 있다. 예시적 구현예에서, 상기 튜브 형태의 롤투롤 코팅 장치는 상기 제 1 롤러(250)와 상기 전처리부(400) 사이에 형성된 제 1 가스 도입부(10), 상기 전처리부와 상기 그 래핀 합성부 사이에 형성된 제 2 가스 도입부 (20), 상기 그 래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부(30), 및 상기 냉각부와 상기 제 2 롤러(300) 사이에 형성된 제 1 가스 배출부(40)를 추가 포함할 수 있다. 여기서, 상기 제 1 가스 도입부(10) 내 지 제 3 가스 도입부(30), 및 제 1 가스 배출부(40)는 금속부재(150) 표면에 그 래핀을 합성과 동시에 코팅하는 공정에 필요한 각종 가스를 도입하거나 배출한다.

[0049] 상기 튜브 형태의 롤투롤 코팅 장치는 챔버 형태의 롤투롤 코팅장치와 마찬가지로, 수직 또는 수평으로 배치할 수 있다. 예컨대, 상기 제 1 롤러(250), 상기 전처리부, 상기 그 래핀 합성부, 상기 냉각부 및 상기 제 2 롤러 (300)는 수직 또는 수평으로 배치되는 것일 수 있다(도 4, 도 5 참조). 상기 제 1 롤러(250), 상기 전처리부, 상기 그 래핀 합성부 및 상기 제 2 롤러(300)를 수직으로 배치하는 경우 고온에서 변형 및 휨 현상을 방지하고 열의 구배를 안정적으로 유지시킬 수 있다. 상기 장치를 수평으로 배치하는 경우에 휨 현상 또는 고온에서 변형되는 현상을 최소화하기 위해 특별한 지그 제작을 통해 상기 금속부재(150)를 안정적으로 이송할 수 있다. 상기 본원에 따른 그 래핀 롤투롤 코팅 장치(700)에 있어서 상기 그 래핀 합성부 내부 또는 상기 장치 내부는 진 공 및 상압 기반으로 가동 가능하며, 상기 그 래핀 롤투롤 코팅 장치(700)가 대형화될 경우, 금속부재 외부는 상 압 기반으로 공정이 운용되고 금속부재의 내부, 예를 들어 금속관의 내부는 진공 분위기에서 그 래핀이 합성 가 능하도록 시스템을 형성할 수 있으나, 본원이 이에 제한되는 것은 아니다.

[0050] 예시적 구현예에서, 금속부재(150)를 상기 그 래핀 롤투롤 코팅 장치(700) 내로 도입하기 위하여 전처리부 측의 말단에 구비된 막음부(미도시)는 내열성이 우수한 고분자, 예를 들어, PTFE(Polytetrafluoroethylene) 계 고무 를 사용하여 제조된 것을 사용할 수 있으며, 이를 통해 상기 금속부재(150)의 표면에 코팅된 그 래핀이 스크래치 되는 것을 방지하거나 가스 누수를 방지할 수 있다.

[0051] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재가 내부에 빈 공간을 가진 형태, 예를 들어 금속관인 경우, 상기 제 1 롤러(250)는 상기 금속관 내부로 가스를 공급하기 위한 제 4 가스 도입부(50)가 구비되어 있으며, 상기 제 2 롤러(300)는 상기 금속관 내부로부터 가스를 제거하기 위한 제 2 가스 배출부(60)가 구비되어 있는 것일 수 있 다. 상기 제 4 가스 도입부(50) 및 제 2 가스 배출부(60)는 상기 금속관 내부 표면에 그 래핀을 합성과 동시에 코팅시키는 공정을 위하여 사용되는 것으로서, 상기 제 4 가스 도입부(50)를 통하여 금속관이 감겨 있는 제 1 롤러(250) 및 제 2 롤러(300)의 구동 방향과 관계없이 주입되는 가스를 안정적으로 공급할 수 있다. 이와 관련 하여, 예를 들어, 제 4 가스 도입부(50)의 일 말단부는 제 1 롤러(250)에 감겨 있는 금속관의 일 말단과 제 1 롤러(250) 내부에서 유연성 연결 부재에 의하여 연통될 수 있도록 설계될 수 있다. 또한, 제 2 가스 배출부 (60)의 일 말단부 역시 제 2 롤러(300)에 의하여 감겨지는 금속관의 일 말단과 제 2 롤러(300) 내부에서 유연성 연결 부재에 의하여 연통될 수 있도록 설계될 수 있다.

[0052] 본원의 다른 측면에 있어서, 상기 장치를 이용한 금속부재(150)에 그 래핀을 롤투롤 코팅하는 방법으로서, 금속 부재를 롤투롤 방식에 의하여 제 1 롤러로부터 전처리부로 공급하고; 상기 공급된 금속부재를 전처리부 에서 표면 처리하고; 상기 전처리된 금속부재를 그 래핀 합성부로 이동시켜 상기 금속부재의 표면에 그 래핀을 합 성과 동시에 코팅하고; 및 상기 그 래핀 합성부를 통과한 상기 그 래핀이 코팅된 금속부재를 롤투롤 방식으로 제 2 롤러에 감아 회수하는 것: 을 포함하는, 그 래핀 롤투롤 코팅 방법을 제공할 수 있다.

- [0053] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재의 표면 상에 그래핀의 합성과 코팅은, 챔버 형태의 상기 그래핀 합성부 내의 가스 노즐을 통해 탄소 소스를 포함하는 반응 가스를 주입하여 상기 금속부재 표면에 화학 기상 증착법에 의하여 그래핀이 합성되어 코팅되는 것일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0054] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재(150)는 그의 표면에 형성된 그래핀 성장용 금속 촉매층을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다.
- [0055] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층은 Ni, Co, Fe, Pt, Au, Al, Cr, Cu, Mg, Mn, Mo, Rh, Si, Ta, Ti, W, U, V, Zr, 황동(brass), 청동(bronze), 백동(white brass), 스테인레스 스틸(stainless steel), Ge 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 일 구현예에서, 상기 금속부재(150)가 Cu를 포함하고, 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층은 Ni 또는 Fe을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다.
- [0056] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀이 코팅된 금속부재를 상기 제 2 롤러에 감아 회수하기 전에 냉각부로 이동시켜 냉각시키는 것을 추가 포함할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0057] 예시적 구현예에서, 상기 제 1 롤러(250)와 상기 전처리부 사이에 형성된 제 1 가스 도입부(10)를 통하여 환원 가스가 주입될 수 있다. 상기 환원 가스는 예를 들어, 수소 가스일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 상기 전처리부에서 예열 공정이 수행되는 경우, 상기 그래핀 합성부의 온도와 동일하게 또는 그보다 낮은 온도로 예열될 수 있다.
- [0058] 예시적 구현예에서, 상기 전처리부와 상기 그래핀 합성부 사이에 형성된 제 2 가스 도입부(20)를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스가 주입되어 상기 그래핀 합성부에서 상기 금속부재(150) 표면에 화학 기상 증착법에 의하여 그래핀이 합성되어 코팅되는 것일 수 있다. 상기 그래핀 합성부에서의 그래핀 합성과 코팅 공정은 상기 언급한 롤투롤 코팅 장치에 대하여 기술된 내용을 모두 포함할 수 있으며, 편의상 중복 기재를 생략한다.
- [0059] 예시적 구현예에서, 상기 제 1 롤러에 구비된 제 4 가스 도입부를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스가 상기 금속부재, 예를 들어, 금속관 내부로 주입되어, 상기 그래핀 합성부 통과 시 추가로 상기 금속관의 내부 표면에 그래핀이 합성되어 코팅되는 것일 수 있다.
- [0060] 상기 가스 주입부들 및 가스 배출부들은 상기 그래핀 롤투롤 코팅 장치(700)에 있어서 상기 제 1 롤러 및 제 2 롤러가 순방향/역방향으로 회전해도 각종 가스 공급 라인이 독립적으로 움직일 수 있도록 설계될 수 있다.
- [0061] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부(30)를 통하여 퍼지용 가스가 주입되는 것일 수 있다. 상기 퍼지용 가스로는 예를 들어, 아르곤, 질소, 헬륨 가스를 사용할 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다.
- [0062] 예시적 구현예에서, 상기 냉각부와 상기 제 2 롤러(300) 사이에 형성된 제 1 가스 배출부(40)를 통하여 상기 전처리부, 상기 그래핀 합성부 및 상기 냉각부를 통과한 가스가 배출되는 것일 수 있다.
- [0063] 예시적 구현예에서, 상기 제 2 롤러에 의하여 회수된 상기 금속부재(150)에 코팅된 그래핀 표면에 그래핀 성장용 금속 촉매층을 형성하고; 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층이 형성된 그래핀이 코팅된 금속부재(150)에 대하여 상기 그래핀 롤투롤 코팅 장치를 이용하여 추가로 그래핀을 합성과 코팅하는 것: 을 포함하는 공정을 1 회 이상 수행하여 상기 그래핀이 코팅된 금속부재에 그래핀을 추가 코팅하여 다층 그래핀을 코팅할 수 있다. 이를 통해 10 층 이상의 그래핀을 금속부재 상에 보호막으로서 형성할 수 있다.
- [0064] 예를 들어, 구리관을 이용하여 그 표면에 단층 그래핀 필름을 합성과 동시에 코팅시킨 후, 비교적 두꺼운 그래핀 층을 합성할 수 있는 니켈 금속 등과 같은 그래핀 성장용 금속 촉매층을 전해도금 등의 방법으로 상기 구리관 표면에 코팅된 그래핀 필름 상에 증착한 후 상기 그래핀 롤투롤 코팅 장치 내로 통과시켜 10 층 이상의 그래핀을 포함하는 그래핀 필름을 상기 구리관 외벽에 추가 코팅하여 그래핀 보호막을 형성할 수 있다.
- [0065] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재(150)는 Ni, Co, Fe, Pt, Au, Al, Cr, Cu, Mg, Mn, Mo, Rh, Si, Ta, Ti, W, U, V, Zr, 황동(brass), 청동(bronze), 백동(white brass), 스테인레스 스틸(stainless steel), Ge 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다.
- [0066] 예시적 구현예에서, 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층은 Ni, Co, Fe, Pt, Au, Al, Cr, Cu, Mg, Mn, Mo, Rh, Si, Ta, Ti, W, U, V, Zr, 황동(brass), 청동(bronze), 백동(white brass), 스테인레스 스틸(stainless steel), Ge

및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다.

- [0067] 예시적 구현예에 있어서, 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층은 박막 또는 후막일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다. 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층이 박막인 경우 그 두께는 1 nm 내지 1000 nm 인 것을 포함할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다. 또한 상기 그래핀 성장용 금속 촉매층이 후막인 경우 그 두께는 0.01 mm 내지 5 mm 인 것을 포함할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0068] 본원에 또 다른 측면에 있어서, 그래핀이 코팅된 금속부재(150)를 제공할 수 있다(도 6 참조). 상기 그래핀이 코팅된 금속부재(150)는 그의 어느 일면 또는 양면 모두 단층 또는 다층 그래핀으로 코팅된 것일 수 있다. 상기 그래핀이 코팅된 금속부재(150)는 상기한 바와 같은 그래핀 물투를 공정에 의하여 그래핀이 코팅된 것으로서 물 형태로 제공될 수 있다.
- [0069] 예시적 구현예에서, 상기 금속부재(150) 중, 금속관 또는 금속관은 전열관 또는 전열관일 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 이러한 전열관 또는 전열관은 전기, 공조, 기계 및 우주공학분야에서 폭넓게 사용되고 있는 열 전달 시스템으로서 사용되는 것일 수 있다. 본원에 따라 그 표면에 그래핀이 코팅된 전열관 또는 전열관을 사용하여 상기한 바와 같은 열전달 시스템을 제조하는 경우 열전달 효율을 향상시킬 수 있다.
- [0070] 도 7는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 구리 전열관 내 흐르는 유체 저항을 평가하기 위한 유체의 접촉각(contact angle)에 대한 분석 결과로서, 구리 전열관 시편 각각의 표면에 대한 사진이다.
- [0071] 접촉각 분석을 위해 시편은 3 종류로 준비하였으며, 도 7에 있어서, (a) 상기 그래핀 물투를 코팅 장치(700)에 의하여 그래핀이 코팅된 구리 전열관, (b) 고온 수소 어닐링(annealing) 처리된 구리 전열관 (환원 처리) 및 (c) 구리 전열관(다량의 표면 산화층이 형성됨)을 나타내고, 유체로서는 물을 사용하였다.
- [0072] 상기 그래핀이 코팅된 구리 전열관은, 상기 그래핀 물투를 코팅 장치(700)를 이용하여 제조되었다. 구체적으로, 구리 전열관을 물투를 방식에 의하여 제 1 롤러(250)로부터 상기 전처리부(약 800℃)로 공급하고; 제 1 가스 도입부(10)를 통하여 상압에서 또는 약 180 mTorr에서 약 10 sccm H₂ 를 흘려주면서 상기 공급된 구리 전열관을 전처리부 (약 800℃)에서 예열시키고; 상기 예열된 구리 전열관을 약 1000℃로 가열된 그래핀 합성부로 이동시켜 상기 구리 전열관의 표면에 그래핀을 합성과 동시에 코팅하고; 상기 그래핀이 코팅된 구리 전열관을 냉각부로 이동시켜 냉각시키고; 상기 냉각부를 통과한 그래핀이 코팅된 구리 전열관을 물투를 방식으로 제 2 롤러(300)에 감아 회수함으로써, 그래핀이 코팅된 구리 전열관을 수득하였다. 상기 그래핀을 합성과 동시에 코팅하는 과정은, 제 2 가스 도입부(20)를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스(CH₄ : H₂ = 30 : 10 sccm)를 약 1.6 Torr에서 약 30 분 동안 공급하여 그래핀을 상기 구리 전열관 표면에 합성과 동시에 코팅하였다. 이후 상기 그래핀 합성부와 상기 냉각부 사이에 형성된 제 3 가스 도입부(30)를 통하여 퍼지용 가스로 Ar 가스를 주입하여 상기 그래핀이 코팅된 구리 전열관을 냉각하였다. 필요한 경우, 상기 제 1 롤러(250)에 구비된 제 4 가스 도입부(50)를 통하여 그래핀 합성을 위한 탄소 소스를 포함하는 반응 가스가 상기 구리 전열관 내부로 추가 주입되어 상기 그래핀 합성부 통과 시 상기 구리 전열관의 외부 표면 및 내부 표면에 그래핀이 합성되어 코팅될 수 있다.
- [0073] 여기서, (a)와 (c)의 경우, 순수 구리 표면(b)에 비해 표면 접촉각(contact angle: CA)이 약 5 도 이상 높게 나타났으며 이는 동일한 유체가 상기 구리 전열관 내를 이동할 때 발생하는 저항의 차이가 존재할 수 있음을 보여 준다. 또한 상기 구리 전열관의 표면에 그래핀을 코팅한 후, 금속 표면의 열처리를 통하여 표면 조도를 개선함으로써 그래핀 필름이 코팅된 전열관 내 유체 저항을 더욱 향상시킬 수 있다.
- [0074] 도 8은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 유체 및 대기 분위기 하에서 그래핀 필름이 코팅된 구리 전열관 표면의 내화학/내부식성을 평가한 결과이다. 도 8에서 사용된 시편은 도 7에서 사용된 시편과 동일한 시편들을 사용하였고 광학현미경 분석을 통해 시편 각각의 표면 상태를 비교하였다. 실험 조건은 각 시편을 물에서 하루 동안 담지한 후, 대기 분위기 하(상압)에서 약 10 시간 동안 건조시킨 후, 샘플들의 표면을 관찰하였다.
- [0075] 시편 (a)의 경우, 산화 테스트 전, 후의 표면이 거의 변화가 없음을 확인하였다. 시편 (b)의 경우, 3가지 시편 중 산화 정도가 가장 심하였으며, 특히 구리 전열관 표면에 눈꽃과 같은 금속 산화 부유물들이 많이 관찰되었다. 반면, 시편 (c)의 경우, 이전에 장시간 동안 구리 전열관 표면에 산화층이 자연스럽게 형성되었기 때문에, (b)와 같은 급속한 산화 반응은 일어나지 않음을 확인하였다. 이를 통해 금속부재(150)의 제조 공정과 더불어 보관 상태 및 운전 환경(온도, 습도, 등)이 상기 금속부재(150)의 성능 및 수명에 매우 민감한 변수로 작용됨을 확인할 수 있다.

- [0076] 따라서, 본원은 산화막이 금속부재(150) 표면 상에 생성되기 전에, 상기 금속부재(150) 표면에 그래핀을 코팅하는 방법 또는 이를 위한 장치를 사용하여 그래핀이 코팅된 금속부재(150)를 제공할 수 있다. 상기 그래핀이 코팅된 금속부재(150)는 상기 그래핀이 금속 표면을 보호함으로써 내화학적 및 내부식성이 개선됨은 물론, 유체와 전열관 내 표면 저항을 최소화시킬 수 있다.
- [0077] 도 9는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 전열관에 대한 고온 유체(기체 포함)의 열전도 평가 결과 및 이를 위한 실험 장치이다.
- [0078] 도 9에서 사용된 시편 또한 도 7에서 사용된 시편과 동일한 시편들을 사용하였고, 도 9a는 (a) 그래핀이 코팅된 구리 전열관 및 (c) 구리 전열관 (다량의 표면 산화층 형성됨)에 대한 것이며, 도 9b는 (b) 고온 수소 처리를 통한 구리 전열관(환원 처리됨)에 대한 것이다.
- [0079] 도 9a를 참조하면, 초기 물의 공급온도는 약 100℃로 고정시켰으나, 상기 구리 전열관까지 도달하는 과정에서 온도가 약 41℃ 감소하였다. 그러나 전열관 입구 온도가 (a)와 (c) 동일하게 약 59℃를 유지하고 있어, 열전달 특성 평가 결과에 영향은 미비할 것으로 판단된다.
- [0080] 열화상 카메라 (Thermal image camera)를 통한 열전달 실험을 위해 유체를 상기 구리 전열관에 약 60 초 동안 공급하였다. 온도 분포를 비교하기 위해 유체 공급 후, 약 20 초, 약 40 초, 약 60 초에서 각각에 대한 온도차를 Testo IRsoft 프로그램을 이용하여 분석하였다. 이를 통해, 모든 시간 영역 내에서 서로 다른 두 전열관의 온도차가 약 5℃로 일정하게 차이가 발생함을 확인할 수 있다. 따라서 본 실험 결과를 통해 그래핀이 코팅된 전열관의 경우, 그래핀이 코팅되지 않은 전열관에 비해 열전달 효율이 크게 향상되었음을 확인할 수 있다.
- [0081] 더 나아가, 고온 영역(약 300℃ 이내)의 유체 열전달 측면에서는 그 편차가 더 클 것으로 예상할 수 있다.
- [0082] 도 9b를 참조하면, 처음 물의 공급 온도는 약 100℃로 고정시켰으나, 상기 구리 전열관까지 도달하는 과정에서 전술한 바와 마찬가지로 온도가 약 41℃ 감소하였다. 그러므로, 전열관 입구 온도가 (a), (b), (c) 에서 동일하게 약 59℃를 유지하였다. 그리고 각각의 전열관에 대한 순간적인 온도 변화를 확인하기 위해 전열관에 약 60 초간 물을 공급한 후 물 공급을 중지시켰다. 온도 분포를 비교하기 위해 유체 공급 후, 약 30 초, 약 60 초, 그리고 물 공급 중지 후 약 60 초가 지난 이후 각각에 대한 온도차를 Testo IRsoft 프로그램을 이용하여 분석하였다. 열화상 카메라로 분석한 결과를 통해 모든 시간 영역대에서 그래핀이 코팅된 전열관의 경우에 대해서만 열전달 특성이 큰 차이가 발생하고 있음을 확인할 수 있다.
- [0083] 본원에 의한 그래핀이 코팅된 전열관은 종래의 전열관보다 약 8% 이상 열전달 효율이 향상될 것으로 예상된다.
- [0084] 이러한 해석 기법을 기반으로 도 9c 및 도 9d는 고온의 기체를 전열관 내로 흘려 보내면서 전열관 내외부 특정 부위에 대한 온도 변화를 측정하기 위해 준비한 실험 장치를 보여준다. 앞서 기술한 방법보다 상세한 해석을 수행하기 위해 전열관 입구와 출구 및 중심부 두 부위에 열전대를 설치하고 실시간으로 데이터를 취득할 수 있도록 시스템을 구성하였다. 아울러 열화상 카메라를 이용하여 동시에 온도 분포를 관측하였다.
- [0085] 열전대를 이용한 실시간 온도 데이터 취득 결과, 그래핀 코팅 전/후의 전열관 표면 온도 변화에 관해 살펴보면 그래핀을 코팅한 전열관이 그래핀을 코팅하지 않은 전열관에 비하여 열전달 효율이 최대 약 8.6% 증가하는 것을 도 9e의 (B) 그래프에서 확인할 수 있다. 아울러 회수되는 열온도 분포를 분석한 결과 도 9e의 (D) 그래프에서 살펴볼 수 있듯이 그래핀을 코팅한 전열관에서 그렇지 않은 전열관에 비해 열회수율이 약 7.6% 증가하는 것을 확인할 수 있었다.
- [0086] 그리하여 그래핀이 코팅된 전열관의 경우, 열 확산이 빨라 급속 가열 및 급속 냉각 시스템에 폭넓게 활용될 수 있으며, 도 10은 본원의 일 실시예에 따른 전열관 또는 전열관을 보여 준다.
- [0087] 도 11은 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu/Ni 와이어의 표면 및 직경변화를 전자현미경으로 관찰한 사진이다. 보다 구체적으로, 도 11a는 비교예로서 Cu/Ni 와이어, 도 11b는 고온 수소 어닐링(annealing) 처리를 통한 Cu/Ni 와이어, 도 11c는 본원의 일 실시예에 따른 그래핀이 코팅된 Cu/Ni 와이어를 전자현미경으로 관찰한 사진으로, 상기 각각의 처리에 의한 Cu/Ni 와이어 직경의 변화를 하기 표 1로 나타내었다.

표 1

Wire type	Bare wire (μm)	Annealed wire (μm)	Graphene coated wire (μm)
Cu/Ni (Atmospheric pressure)	104.8	107.5	108.5
	131.2	138.4	139.3
	169.6	173.6	176
	184	192	193.6
	206.4	212.8	217

[0088]

[0089]

상기 언급한 각각 달리 처리된 세 가지의 Cu/Ni 와이어를 4 탐침법(4-point probe; 도 12a 참조)에 의해 각각의 와이어의 저항을 측정하였다. 도 12b는 본원에서 사용한 4 탐침기의 사진이다. 도 13을 참조하면, (a) 일반적인 Cu/Ni 와이어를 기준으로, 동일한 직경을 가지는 Cu/Ni 와이어에 대하여 (b) 고온 수소 어닐링(annealing) 처리한 경우 (c) 그래핀을 코팅한 경우 상기 와이어에 대한 저항의 변화(variation)을 측정하였다. 측정 결과, (b) 고온 수소 어닐링(annealing) 처리된 Cu/Ni 와이어는 (a) 일반적인 Cu/Ni 와이어보다 비저항이 다소 높은 것으로 나타났으며, (c) 그래핀이 코팅된 Cu/Ni 와이어의 비저항은 (a) 일반적인 Cu/Ni 와이어보다 비저항보다 작은 것으로 관찰되었다. 또한 상기 Cu/Ni 와이어의 직경이 클수록 상기 그래핀이 코팅된 Cu/Ni 와이어의 비저항이 작아져서, 결과적으로 전기적 특성이 최대 47%까지 향상되었음을 관찰할 수 있었다.

[0090]

도 14는 본원의 일 실시예 및 비교예에 따른 Cu 와이어의 표면 및 직경변화를 전자현미경으로 관찰한 사진이다. 보다 구체적으로, 도 14a는 비교예로서 아무 처리도 하지않은 Cu 와이어, 도 14b는 고온 수소 어닐링(annealing) 처리를 통한 Cu 와이어, 도 14c는 본원의 일 실시예에 따른 그래핀이 코팅된 Cu 와이어를 전자현미경으로 관찰한 사진으로, 상기 각각의 처리에 의한 Cu 와이어 직경의 변화를 하기 표 2로 나타내었다.

표 2

Wire type	Bare wire (μm)	Annealed wire (μm)	Graphene coated wire (μm)
Cu (vacuum)	51.6	49.4	44.8
	27.2	25.4	22.96

[0091]

[0092]

도 15는 상기 언급한 각각 달리 처리된 세 가지의 Cu 와이어의 비저항을 나타낸 그래프이다. 도 15를 참조하면, (b) 고온 수소 어닐링(annealing) 처리된 Cu 와이어는 상기 고온 수소 어닐링(annealing) 처리된 Cu/Ni 와이어와 달리, (a) 일반적인 Cu 와이어보다 비저항이 다소 작은 것으로 나타났으며, (c) 그래핀이 코팅된 Cu 와이어의 비저항은 상기 (a), (b) 중 가장 작은 것으로 관찰되었다. 또한, 상기 Cu 와이어의 직경은 작을 수록 상기 그래핀이 코팅된 Cu 와이어의 비저항이 작아져서, 결과적으로 전기적 특성이 최대 32%까지 향상되었음을 관찰할 수 있었다.

[0093]

[0094] 본원에 따른 상기 그래핀에 코팅된 금속부재는 전열관 또는 전열판으로서 광범위한 산업 영역의 전열관 시스템에 적용될 수 있다. 예를 들면, 넓게는 전기·전자부문, 공조부문, 기계부문, 우주공학부문, 유공압 금속 기반의 파이프 시스템 및 건축 냉·난방 등에 적용될 수 있으며, 보다 상세하게는 전력관·전자회로·발전기·변압기 등의 냉각 용도, 전자 부품 및 장치의 냉각 용도, 폐열회수장치, 금속 절단기 등의 냉각 용도, 전동기의 냉각 용도, 공기조화 및 냉동시스템, 태양열 집열기, 국부적인 난방 및 열제어, 제빙 및 제설, 원자로의 냉각 계통, 우주선 탑재기·우주복의 온도 제어, 인공위성 및 열제어 분야 등, 다양한 분야에 널리 이용될 수 있다.

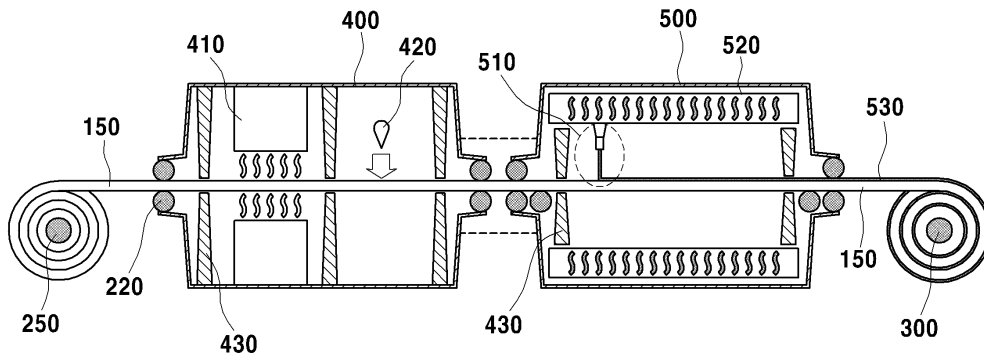
[0095] 이상, 실시예를 들어 본원을 상세하게 설명하였으나, 본원은 상기 실시예들에 한정되지 않으며, 여러 가지 다양한 형태로 변형될 수 있으며, 본원의 기술적 사상 내에서 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의하여 여러 가지 많은 변형이 가능함이 명백하다.

부호의 설명

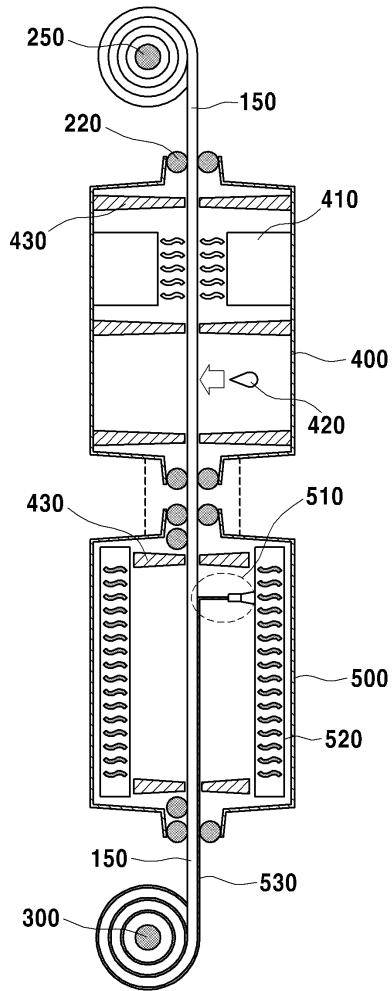
- [0096] 10: 제 1 가스 도입부
- 20: 제 2 가스 도입부
- 30: 제 3 가스 도입부
- 40: 제 1 가스 배출부
- 50: 제 4 가스 도입부
- 60: 제 2 가스 배출부
- 100: 가열 자켓
- 150: 금속부재
- 200: 냉각 자켓
- 220: 롤러
- 250: 제 1 롤러
- 300: 제 2 롤러
- 400: 전처리부
- 410: 플라즈마
- 420: 레이저
- 430: 격벽
- 500: 그래핀 합성부
- 510: 가스 노즐
- 520: 열원
- 600: 냉각부
- 700: 그래핀 몰투몰 코팅 장치

도면

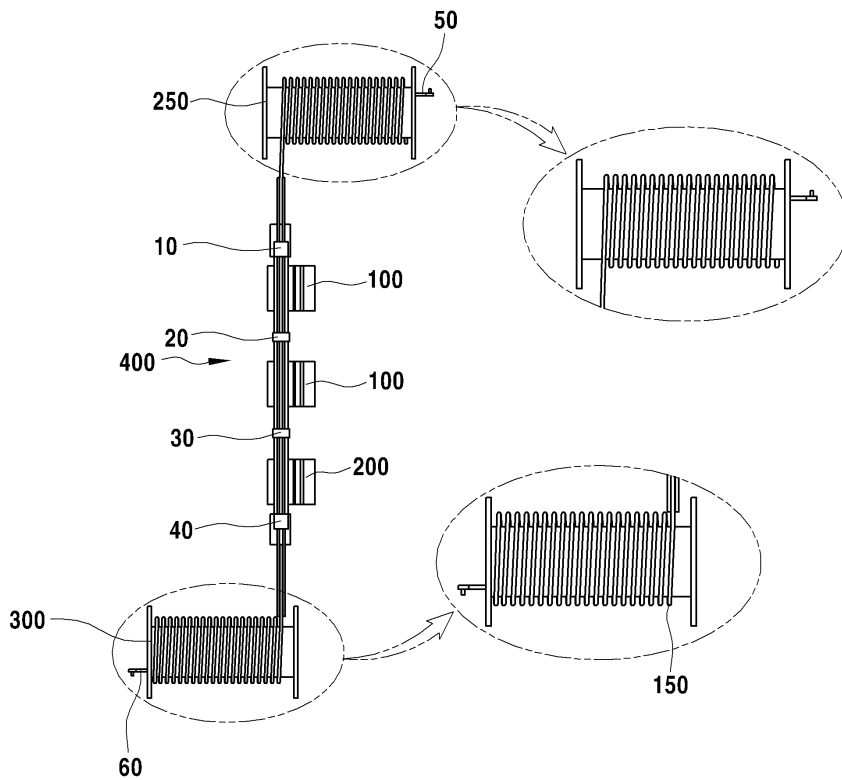
도면1



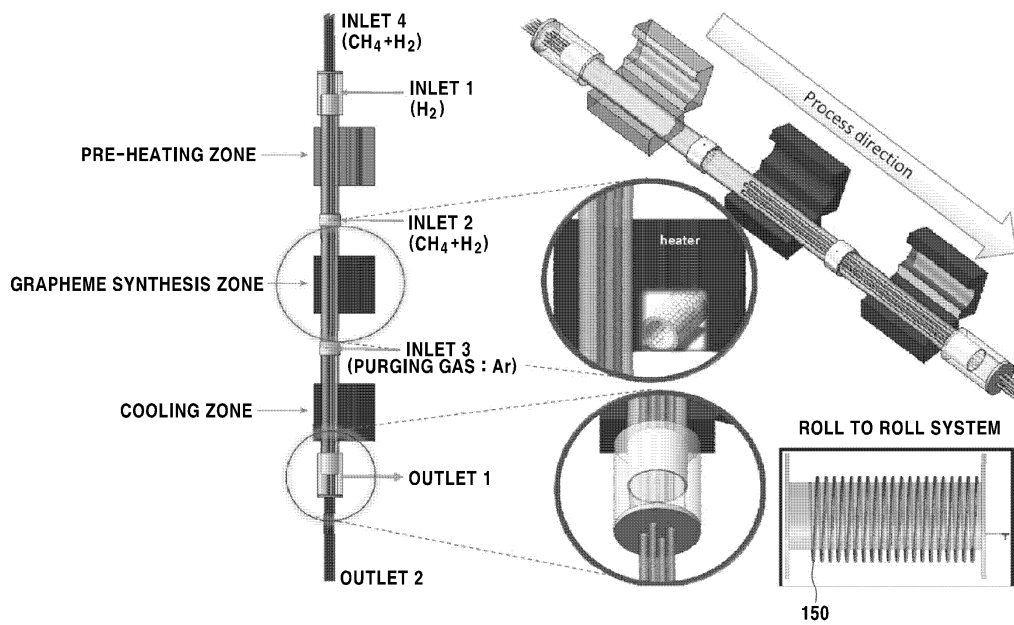
도면2



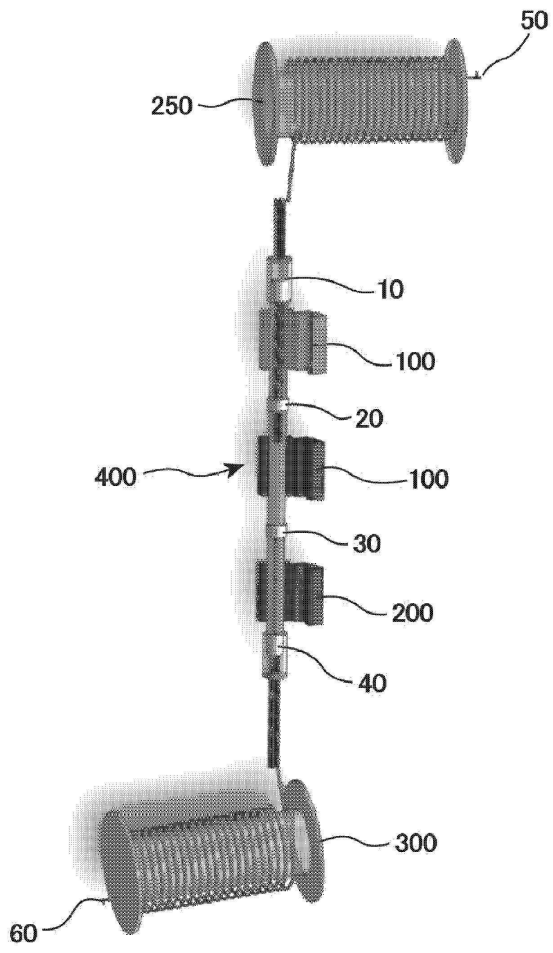
도면3



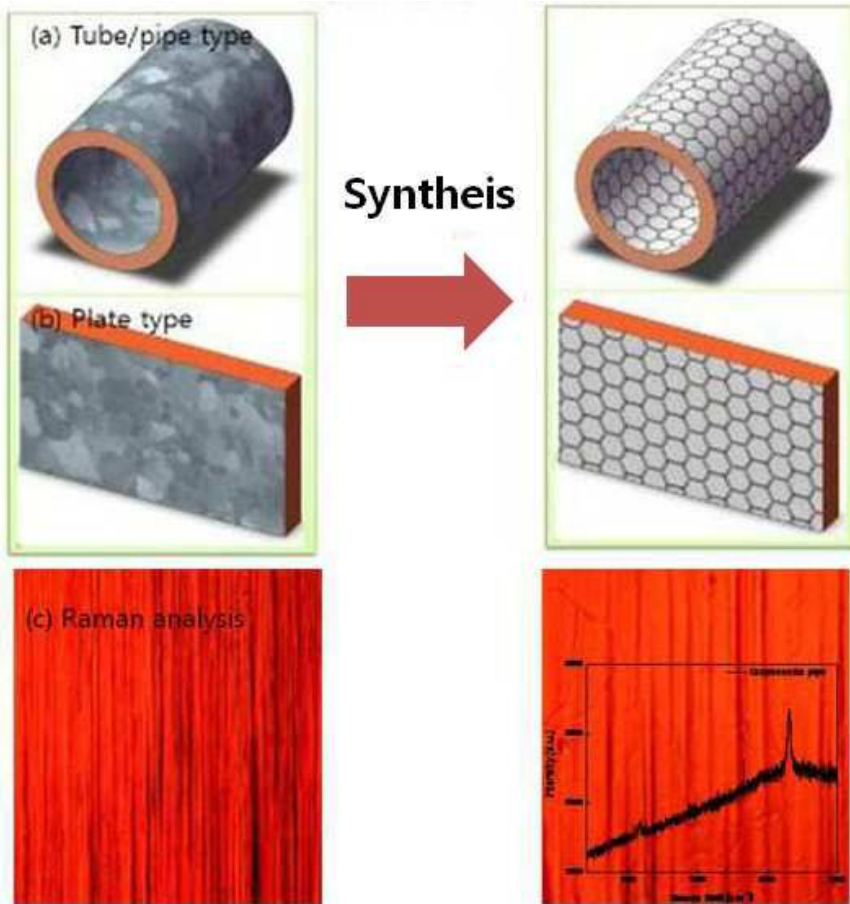
도면4



도면5

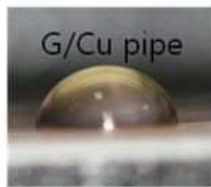
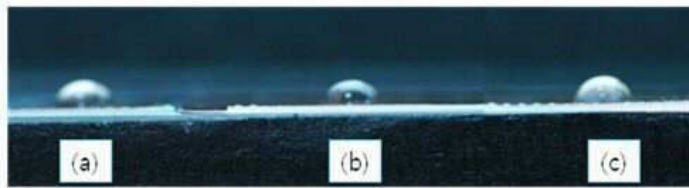


도면6

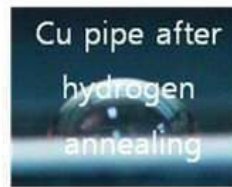


도면7

Contact angle (CA)



(a) CA: 98°



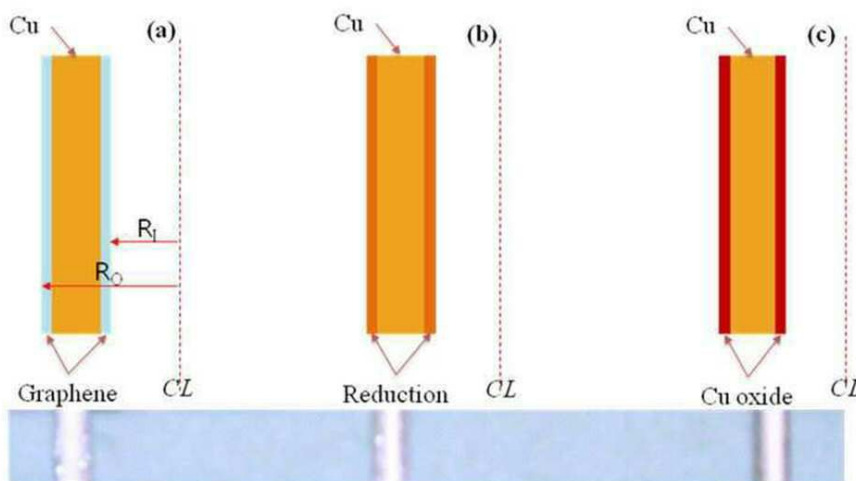
(b) CA: 91°



(c) CA: 100°

(a) ≈ (c) > (b)

도면8



Oxidation test (under DI water(1 day)+ In Air (10 hrs))

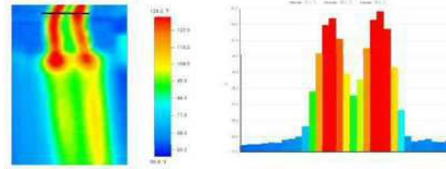


도면9a

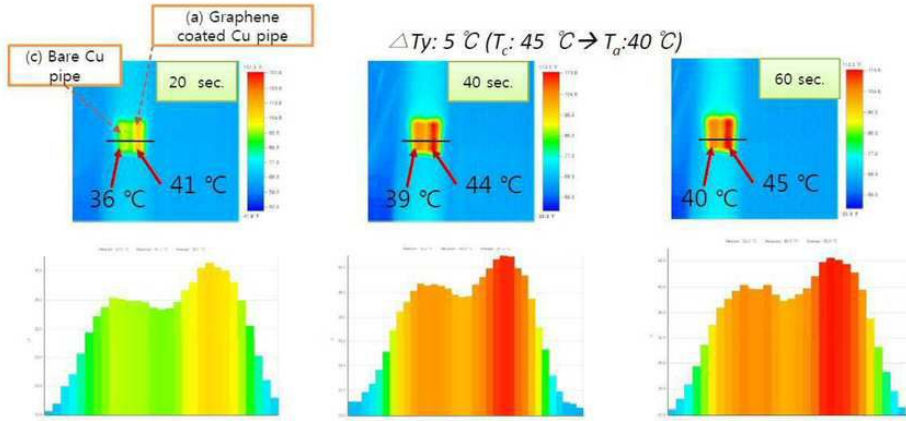
Experimental results

Temperature distribution (IR camera)

Experimental condition
 - DI water temp.: 100 °C
 - Box case: styrofoam (EPS)



$\Delta T_x: 41\text{ }^\circ\text{C}$ ($T_{bath}: 100\text{ }^\circ\text{C} \rightarrow T_{tube}: 59\text{ }^\circ\text{C}$)

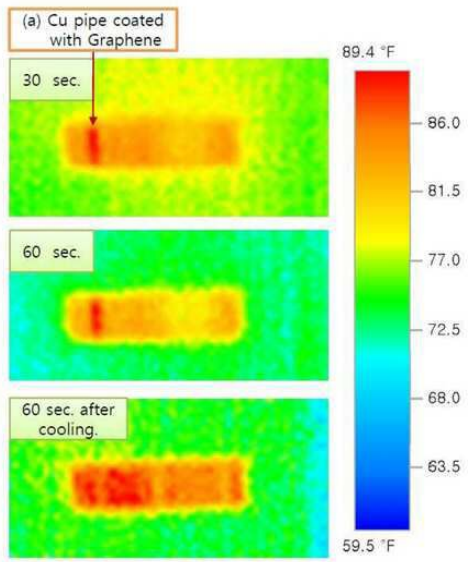
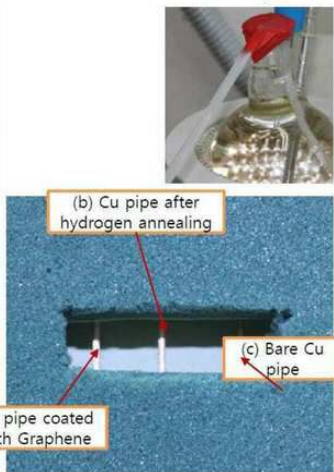


도면9b

System set-up



DI water temp.: 100 °C



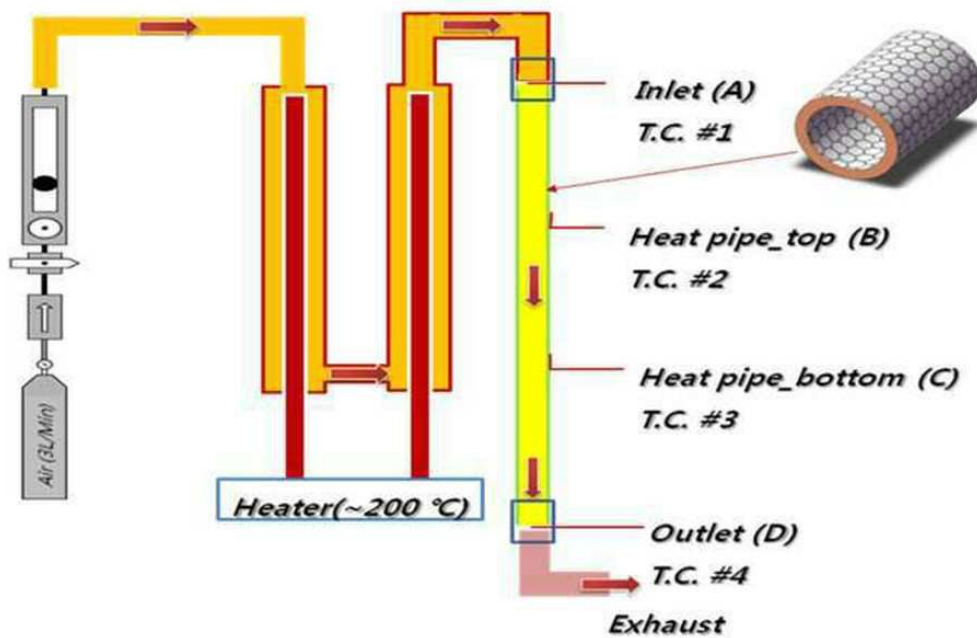
도면9c



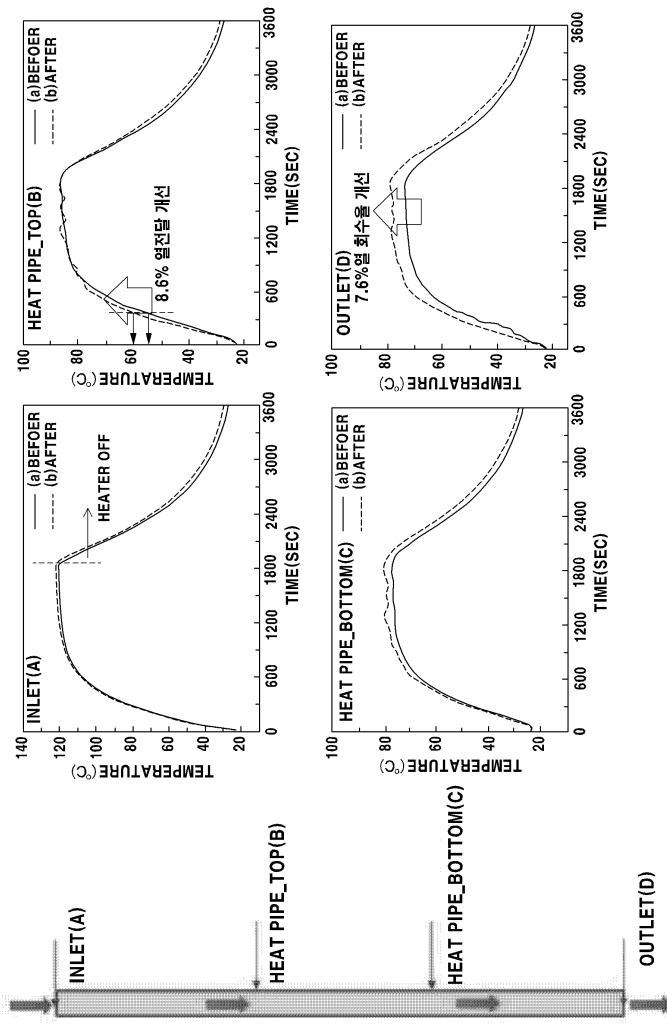
Water based heat-pipe

Air based heat-pipe

도면9d



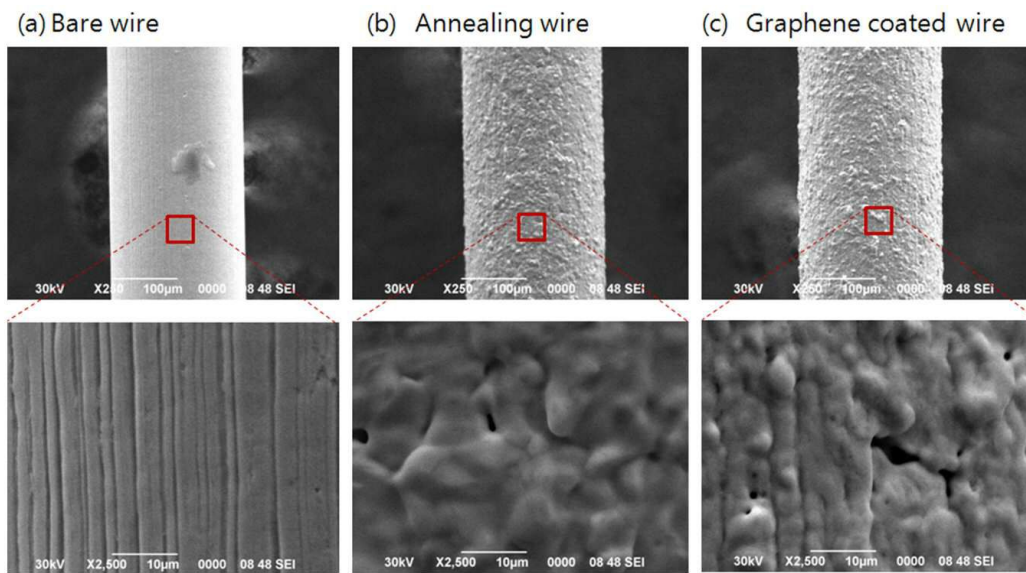
도면9e



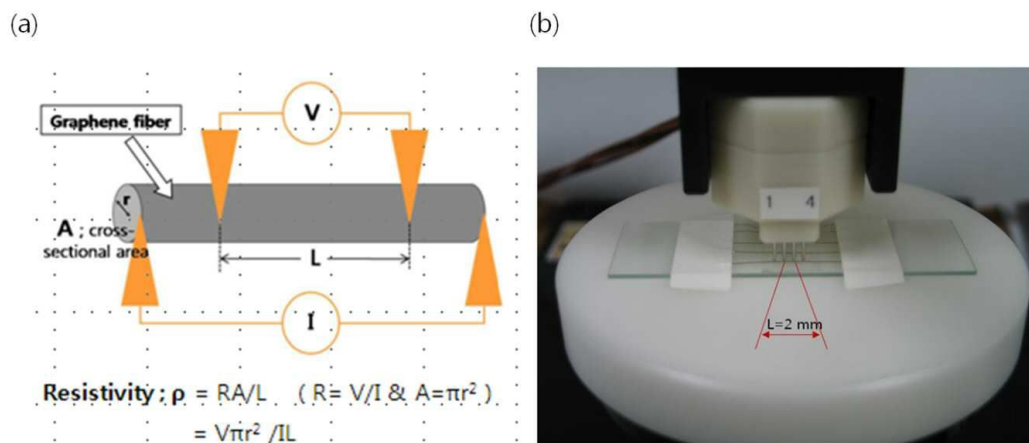
도면10



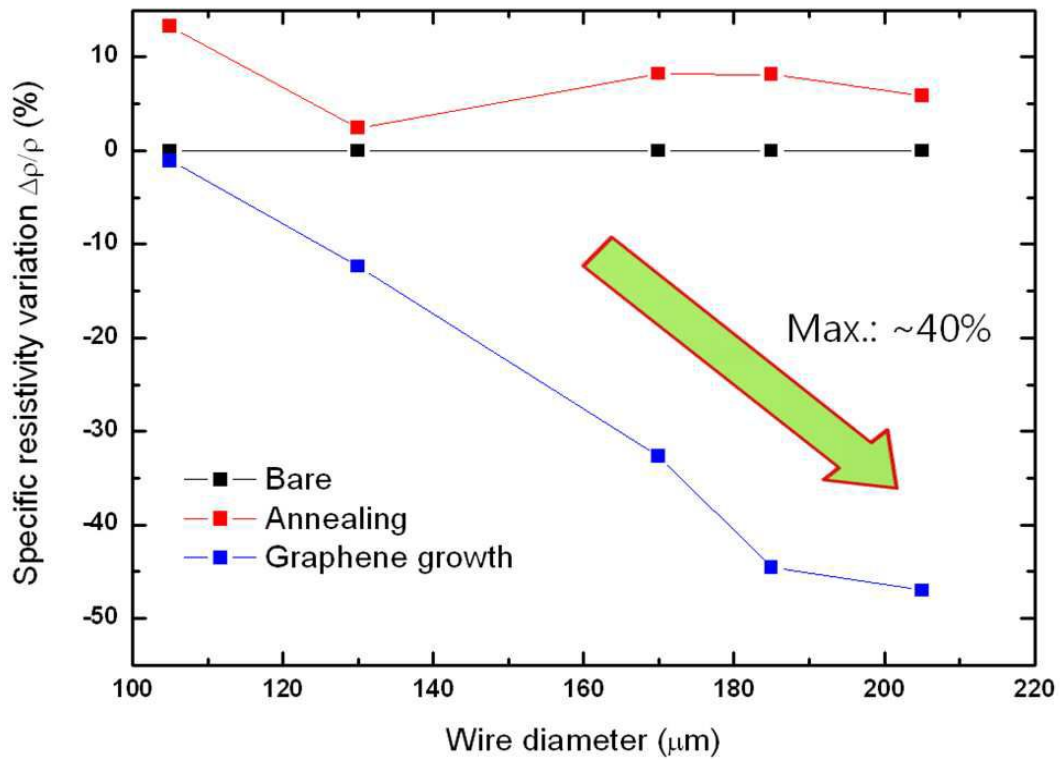
도면11



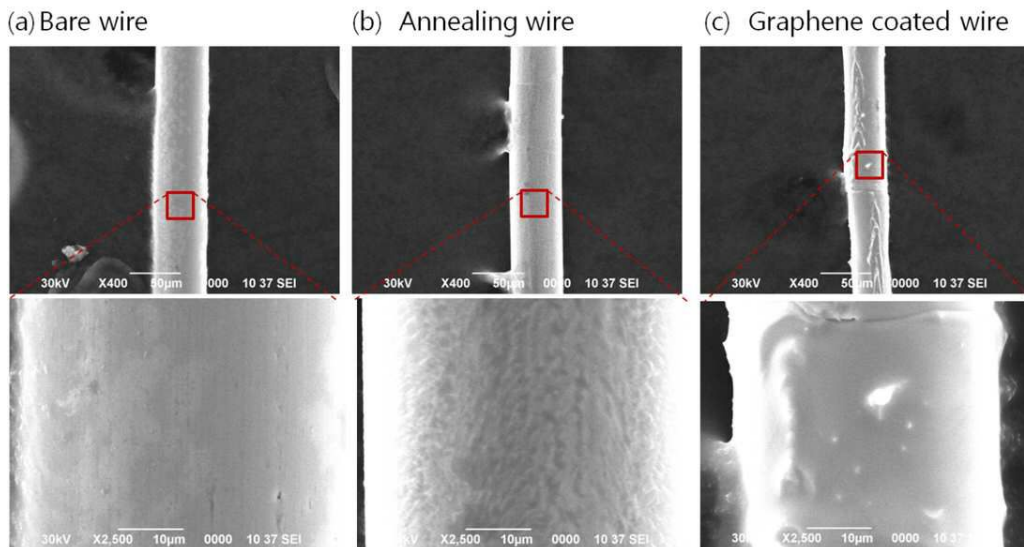
도면12



도면13



도면14



도면15

