



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2016년08월25일  
(11) 등록번호 10-1650724  
(24) 등록일자 2016년08월18일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
H01L 51/56 (2006.01) C01B 31/04 (2006.01)  
H01L 29/16 (2006.01) H01L 51/52 (2006.01)  
(52) CPC특허분류  
H01L 51/56 (2013.01)  
C01B 31/0438 (2013.01)  
(21) 출원번호 10-2015-0100046  
(22) 출원일자 2015년07월14일  
심사청구일자 2015년07월14일  
(56) 선행기술조사문헌  
KR1020140060376 A  
KR101253529 B1

(73) 특허권자  
한국과학기술원  
대전광역시 유성구 대학로 291(구성동)  
(72) 발명자  
최성율  
대전광역시 유성구 대학로 291 한국과학기술원  
임성갑  
대전광역시 유성구 문지로 14, 1동 501호 (도룡동, 과학기술원관리아파트)  
(뒷면에 계속)  
(74) 대리인  
특허법인 다해

전체 청구항 수 : 총 12 항

심사관 : 유창훈

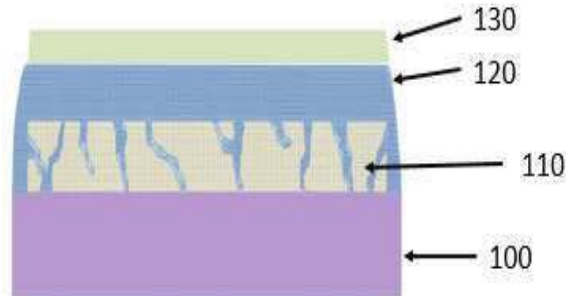
(54) 발명의 명칭 그래핀 기반 봉지막 및 그 제조방법

(57) 요약

본 발명은 2차원 물질층; 상기 2차원 물질층 상에 형성된 소수성 물질층; 및

상기 소수성 물질층 상에 형성된 중간물질층을 포함하여 구성되며, 상기 2차원 물질층, 소수성 물질층 및 중간물질층이 교대로 반복되어 다층구조를 형성하는 것을 특징으로 하는 봉지막에 관한 것이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

*H01L 29/1606* (2013.01)

*H01L 51/5237* (2013.01)

*H01L 2251/56* (2013.01)

(72) 발명자

**김종윤**

대전광역시 유성구 대학로 291 한국과학기술원

---

**박홍근**

대전광역시 유성구 대학로 291 한국과학기술원

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

2차원 물질층;

상기 2차원 물질층 상에 형성된 소수성 물질층; 및

상기 소수성 물질층 상에 형성된 중간물질층을 포함하여 구성되며,

상기 2차원 물질층, 소수성 물질층 및 중간물질층이 교대로 반복되어 다층구조를 형성하는 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 2차원 물질은 그래핀 산화물인 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 3

제 1항에 있어서,

상기 소수성 물질은 불소계 폴리머인 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 4

제 1항에 있어서,

상기 중간물질층은 상기 소수성 물질층의 표면 개질을 위한 것으로, 상기 중간물질층에 사용되는 고분자는 물에 대한 접촉각이 80도 이하인 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 5

청구항 5은(는) 설정등록료 납부시 포기되었습니다.

제 3항에 있어서,

상기 불소계 폴리머는 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리불화비닐리덴, 불화비닐리덴-헥사플루오로프로필렌 공중합체 또는 폴리불화비닐, 폴리헥타데카플루오로데실 메타아크릴레이트, 폴리헥타데카플루오로데실아크릴레이트 및 폴리아크릴레이트 중에서 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 6

제 4항에 있어서,

상기 중간물질층은 폴리실라잔 화합물, 폴리카르보실란 화합물, 폴리실란 화합물 및 폴리오르가노실록산 및 폴리헥사비닐디실록산로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 7

제 1항에 있어서,

상기 소수성물질층 및 중간물질층의 형성은 개시제를 이용한 화학증착공정(iCVD)을 이용하는 것을 특징으로 하는 봉지막.

#### 청구항 8

제 1항 내지 제 7항 중 어느 하나의 항에 따른 봉지막을 포함하는 전자소자.

#### 청구항 9

제 8항에 있어서,

상기 전자소자는 유기발광소자(OLED), 발광소자(LED), 약정표시소자, 전자종이, 플라즈마 디스플레이 패널 및 태양전지소자 중에서 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 전자소자.

#### 청구항 10

(a) 기판 상에 그래핀 산화물 분산층을 형성하는 단계;

(b) 상기 그래핀 산화물 분산층 상에 불소계 고분자층을 형성하는 단계;

(c) 상기 불소계 고분자층 상에 규소계 고분자층을 형성하는 단계 및

(d) 상기 규소계 고분자층의 표면을 친수성으로 개질하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 봉지막 제조방법.

#### 청구항 11

제 10항에 있어서,

상기 불소계 고분자층 및 규소계 고분자층의 형성은 개시제를 이용한 화학증착공정(iCVD)을 이용하는 것을 특징으로 하는 봉지막 제조방법.

#### 청구항 12

제 10항에 있어서,

상기 불소계 고분자층의 불소계 고분자는 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리불화비닐리덴, 불화비닐리덴-헥사플루오로프로필렌 공중합체 또는 폴리불화비닐, 폴리헵타데카플루오로데실 메타아크릴레이트, 폴리헵타데카플루오로데실아크릴레이트 및 폴리아크릴레이트 중에서 선택된 어느 하나이며,

상기 규소계 고분자층의 규소계 고분자는 폴리실라잔 화합물, 폴리카르보실란 화합물, 폴리실란 화합물 및 폴리 오르가노실록산 및 폴리헥사비닐디실록산으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 봉지막 제조방법.

#### 청구항 13

제 10항 내지 제 12항 중 어느 하나의 방법에 의해 제조된 봉지막.

## 발명의 설명

### 기술 분야

- [0001] 본 발명은 그래핀 기반 봉지막 및 그 제조방법에 관한 것으로, 보다 구체적으로는, 유연하고 투명한 전자소자에 적용가능할 뿐만 아니라 산소 및 수분의 차단 효과가 뛰어난 그래핀 기반 봉지막에 관한 것이다.

### 배경 기술

- [0002] 일반적으로 유기 발광 다이오드(OLED; Organic Light Emitting Diode)는 유기화합물을 이용해 자체 발광시키는 차세대 디스플레이 소자로 반응속도가 매우 빠르고 자체 발광으로 인해 색감을 떨어뜨리는 후광장치가 불필요한 여러 가지 장점 때문에 대형 텔레비전부터 모바일 기기까지 널리 이용되고 있다.
- [0003] 유기 발광 다이오드 디스플레이 소자는 투명한 기관 상에 제작되며, 양극 막, 유기 박막, 음극 막의 단면 구조를 갖는다. 일반적으로 양극 전극으로는 ITO를 사용하며, 음극으로는 Al금속막이 사용된다. 전극 사이에는 정공 주입층과 수송층, 발광층, 전자 수송층과 주입층 등의 유기박막층으로 형성되어있다.
- [0004] 이러한 유기 발광 디스플레이 소자에 사용되는 금속 전극과 유기 박막층은 산소와 수분에 취약한 물질들로 이루어져 있다. 따라서, 대기중의 산소 및 수분과 반응하여 산화물 또는 수화물을 형성하여 소자의 발광 특성이 저하되는 문제점이 있다.
- [0005] 이러한 문제점을 보완하기 위하여 유기 발광소자 내에 유입되는 대기 중의 산소 및 수분을 차단하기 위한 다양한 봉지막들이 제시되었고, 이를 사용하고 있다. 일반적으로 금속 산화물과 유기물을 적층한 구조의 봉지막을 사용하고 있다. 하지만, 이러한 봉지막들은 휘어지거나 밴딩 되었을 때 막에 균열이 생기거나 파괴되는 등 외부 충격에 취약한 양상을 보였다.
- [0006] 이러한 문제점을 개선하기 위하여 그래핀을 이용한 봉지막들이 제시되고 있다. 그래핀은 탄소 단일 원자가 육각형 구조로 결합되어진 2차원물질로써 이론적으로는 모든 원소의 차단이 가능하다. 그러나 현재 CVD로 성장되어지는 그래핀의 경우 완벽한 육각형 구조의 그래핀이 만들어 지지 않고 있다. 뿐만 아니라, 원하는 기관상에 그래핀을 전사하는 과정에서 그래핀에 결함이 생기는 현상이 야기되는 것으로 알려져 있다. 이러한 그래핀 내의 결함으로 인하여 그래핀 단일 물질로는 봉지막 특성이 뛰어나지 않은 것으로 알려져 있고, 이를 해결하기 위해 그래핀을 기반으로 한 복합층을 형성하는 봉지막들에 대한 연구 개발이 활발히 진행되고 있다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

- [0007] (특허문헌 0001) 대한민국 등록특허공보 제10-1253529호(2013. 04. 05.) "봉지막 및 이를 포함하는 유기전자소자"

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

- [0008] 본 발명의 목적은 그래핀을 기반으로 하여 산소 및 수분 차단 성능을 향상시킨 그래핀 기반 봉지막 및 그 제조방법을 제공하는것을 목적으로 한다.
- [0009] 한편, 본 발명의 명시되지 않은 또 다른 목적들은 하기의 상세한 설명 및 그 효과로부터 용이하게 추론할 수 있는 범위 내에서 추가적으로 고려될 것이다.

### 과제의 해결 수단

- [0010] 상기 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 2차원 물질층; 상기 2차원 물질층 상에 형성된 소수성 물질층; 및 상기 소수성 물질층 상에 형성된 중간물질층을 포함하여 구성되며, 상기 2차원 물질층, 소수성 물질층 및 중간물질층이 교대로 반복되어 다층구조를 형성하는 것을 특징으로 하는 봉지막을 제공할 수 있다.
- [0011] 상기 2차원 물질은 그래핀 산화물일 수 있으며, 상기 소수성 물질은 불소계 폴리머로 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리불화비닐리덴, 불화비닐리덴-헥사플루오로프로필렌 공중합체 또는 폴리불화비닐, 폴리헥타데카플루오로데실 메타아크릴레이트, 폴리헥타데카플루오로데실아크릴레이트 및 폴리아크릴레이트 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0012] 상기 중간물질층은 상기 소수성 물질층의 표면 개질을 위한 것으로, 상기 중간물질층에 사용되는 고분자는 물에 대한 접촉각이 80도 이하인 그 일 예로 폴리실라잔 화합물, 폴리카르보실란 화합물, 폴리실란 화합물 및 폴리오르가노실록산 및 폴리헥사비닐디실록산으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0013] 본 발명의 일 실시예에서, 상기 소수성물질층 및 중간물질층의 형성은 개시제를 이용한 화학증착공정(iCVD)을 이용할 수 있다.
- [0014] 본 발명에 따른 봉지막을 포함하는 전자소자를 제공할 수 있으며, 상기 전자소자는 유기발광소자(OLED), 발광소자(LED), 약정표시소자, 전자종이, 플라즈마 디스플레이 패널 및 태양전지소자 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0015] 또한, 본 발명은 (a) 기판 상에 그래핀 산화물 분산층을 형성하는 단계; (b) 상기 그래핀 산화물 분산층 상에 불소계 고분자층을 형성하는 단계; (c) 상기 불소계 고분자층 상에 규소계 고분자층을 형성하는 단계 및 (d) 상기 (e) 상기 규소계 고분자층의 표면을 친수성으로 개질하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 봉지막 제조방법을 제공할 수 있다.
- [0016] 본 발명의 일 실시예에 따른 봉지막 제조방법에 있어서, 상기 불소계 고분자층 및 규소계 고분자층의 형성은 개시제를 이용한 화학증착공정(iCVD)을 이용할 수 있으며, 상기 불소계 폴리머는 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리불화비닐리덴, 불화비닐리덴-헥사플루오로프로필렌 공중합체 또는 폴리불화비닐, 폴리헥타데카플루오로데실 메타아크릴레이트, 폴리헥타데카플루오로데실아크릴레이트 및 폴리아크릴레이트 중에서 선택된 어느 하나일 수 있고, 상기 규소계 고분자는 폴리실라잔 화합물, 폴리카르보실란 화합물, 폴리실란 화합물 및 폴리오르가노실록산 및 폴리헥사비닐디실록산으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나일 수 있다.

### 발명의 효과

- [0017] 본 발명에 의하면 앞서서 기재한 본 발명의 목적을 모두 달성 할 수 있다.
- [0018] 구체적으로는, 본 발명은 그래핀 기반 물질 및 불소계열의 고분자를 포함하는 봉지막을 제시하여, 유연하고 투명한 전자소자에 적용이 가능하며, 산소 및 수분의 유입을 효과적으로 차단하여 소자의 내구성 및 안정성을 장시간 유지시킬 수 있다.
- [0019] 본 발명의 목적은 이상에서 언급한 것으로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 목적들은 아래의 기재로부터 본 발명이 속하는 기술분야의 통상의 지식을 가진 자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

### 도면의 간단한 설명

- [0020] 도 1 및 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 산화물 기반의 플렉시블한 투명 봉지막의 단면도 및 평면도를 나타내는 그림이다.
- 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 기반 물질을 이용한 봉지막의 제작과정을 나타내는 모식도이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0021] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 첨부한 도면을 참조하여 당해 분야의 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 설명하기로 한다. 또한, 본 발명을 설명함에 있어 관련된 공지 기능 또는 공지의 구성에 대한

구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명을 생략하기로 한다. 그리고 도면에 제시된 어떤 특징들은 설명의 용이함을 위해 확대 또는 축소 또는 단순화된 것이고, 도면 및 그 구성요소들이 반드시 적절한 비율로 도시되어 있지는 않다. 그러나 당업자라면 이러한 상세 사항들을 쉽게 이해할 것이다.

- [0022] 종래의 그래핀을 이용한 지금까지의 봉지막 기술들은 유기물 층의 두께가 두꺼워야 한다는 점과 유기물 층에서 유입되는 산소 및 수분을 효과적으로 막아 주지 못하는 문제점이 있었다. 그리고, 금속 산화물 막을 도입한 경우에도 외부 충격에 의해 금속 산화물 막이 손상된다는 점과 투과도가 낮아져 유연하고 투명한 유기발광소자에 적용하기 어렵다는 문제점을 가지고 있었다.
- [0023] 본 발명은 종래의 기술의 문제점과 현재 요구되는 기술적 과제를 해결하는 것을 목적으로 한다. 이에 본 발명자는 특정한 구조의 봉지막을 개발하였으며, 상기 봉지막은 2차원 물질층(그래핀 기반 물질)/불소계열의 고분자를 이용하여 유연하고 투명한 전자소자에 적용이 가능하도록 하였다. 또한, 본 발명의 봉지막을 사용하면 산소 및 수분의 유입을 효과적으로 차단하여 소자의 내구성 및 안정성을 장시간 유지시킬 수 있음을 확인할 수 있었다.
- [0024] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 산화물 기반의 플렉시블 투명 봉지막의 단면구조를 나타내며, 도 2는 상기 봉지막의 평면도를 나타낸다.
- [0025] 도 1 및 도 2를 참조하면, 본 발명은 그래핀 기반 물질/불소계 폴리머 박막 층으로 구성된 이중층이 하나 이상 적층된 것을 특징으로 한다. 그래핀 기반 물질은 물질 내의 결함으로 인하여 산소 및 수분의 차단이 용이하지 않다. 이를 보완하고자 본 발명에서는 소수성 물질층을 도입하였으며, 특히 소수성이 강한 불소계 폴리머를 그래핀 위에 증착하여 산소 및 수분의 투과를 차단성을 향상시키고자 하였다.
- [0026] 결과적으로 그래핀 기반 물질 내에 존재하는 결함을 불소계 폴리머가 보완해 줌으로써 산소 및 수분의 투과를 저하시킬 수 있다. 그래핀 기반 물질과 불소계 폴리머를 적층 시킴으로 봉지막의 특성을 향상시키는게 가능하다. 또한, 본 발명에 사용된 물질들은 높은 광 투과도와 외부 충격에 강한 물질들으로써 유연하고 투명한 전자소자에 적용이 용이하다. 상기 전자소자는 유기발광소자(OLED), 발광소자(LED), 약정표시소자, 전자종이, 플라스마 디스플레이 패널 및 태양전지소자 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0027] 상기 불소계 폴리머는 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리클로로트리플루오로에틸렌, 폴리불화비닐리덴, 불화비닐리덴-헥사플루오로프로필렌 공중합체 또는 폴리불화비닐, 폴리헥타데카플루오로데실 메타아크릴레이트, 폴리헥타데카플루오로데실아크릴레이트 및 폴리아크릴레이트 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0028] 한편, 본 발명 봉지막 구조의 핵심은 발수성의 불소계 고분자와 그래핀 산화물이 다층의 적층 구조를 형성하는데 있는데, 이때 불소계 고분자 표면은 소수성이 강하여 물에 분산된 그래핀 산화물이 위에 스핀코팅(spin-coating) 등 액상 공정을 통해 도포되기 어려운 문제가 있다. 따라서 본 발명에서는 중간물질층을 도입하여 소수성 표면의 습윤성(wettability)을 조절을 하였다.
- [0029] 본 발명의 일 실시예에서는 상기 중간물질층으로 규소계 고분자를 사용하였으며, 상기 규소계 고분자의 경우 Si와 O이 주사슬을 이루는 고분자 구조로, 그 자체는 친수성이 부족하지만, UV-오존이나 산소 플라스마와 같은 간단한 표면 처리만으로도 친수성 표면으로 쉽게 전환될 수 있는 특징이 있다.
- [0030] 상기 규소계 고분자는 폴리실라잔 화합물, 폴리카르보실란 화합물, 폴리실란 화합물 및 폴리오르가노실록산 및 폴리헥사비닐디실록산로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0031] 본 발명의 일 실시예로 사용된 중간물질층으로 반드시 규소계 폴리머로 한정할 필요는 없으며, 고분자의 경우 조성보다는 물에 녹지 않으면서도 물에 대한 접촉각이 낮아(접촉각이 80도 이하) 그 표면에 액상공정을 통한 코팅이 용이한 고분자이면 가능하다.
- [0032] 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 그래핀 기반 물질을 이용한 봉지막의 제조과정을 나타내는 모식도이다.
- [0033] 도 3을 살펴보면, 우선 투명하고 유연한 폴리머 기판을 친수성으로 만들어 주기 위하여 오존 처리를 한다. 여기에서 폴리머 기판은 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET), 폴리에틸렌나프탈레이트(PEN) 폴리에틸렌(PE), 폴리에테르설폰(PES), 폴리카보네이트(PC), 폴리아릴레이트(PAR) 및 폴리이미더(PI)로 이루어지는 군으로부터 선택되는 어느 하나의 플렉시블 고분자 기판일 수 있다.
- [0034] 그리고 상기 기판 위에 그래핀 기반 물질을 코팅해 주고 그 위에 소수성의 불소계 폴리머를 증착하여 준다. 이 과정을 반복하기 위하여 불소계 폴리머 보다 오존 처리가 용이한 규소계 폴리머를 증착하고 앞의 과정을 동일하

게 진행해 준다. 이러한 과정을 통하여 그래핀 기반 물질/불소계 폴리머를 한 주기로한 다층 구조의 봉지막을 제작 할 수 있다. 불소계 폴리머는 그래핀 기반 물질 내에 존재하는 결함으로 인한 투습도 차단 능력의 저하를 보완해 준다.

[0035] 본 발명에서 불소계 폴리머와 규소계 폴리머의 증착공정은 일반적으로 고분자 필름의 경우에 사용되는, 합성된 고분자를 용매에 녹여 spin-coating, bar-coating등의 공정을 통해 표면에 도포한 후 용매를 휘발 시켜 필름을 형성하는 액상 공정을 사용할 수 있다. 하지만, 이와 같은 기존의 방식의 경우 고분자 필름을 형성하고자 하는 표면의 습윤성(wettability)이나 용매에 대한 orthogonality(도포하고자 하는 고분자는 녹일 수 있으나 코팅되는 표면은 녹이지 않는)가 확보되어야 가능하며, 이러한 용매의 잔유물이 불순물(impurity)로 작용할 수 있는 민감한 소재분야에서는 제한적인 방식이 될 수 있다.

[0036] 그러므로, 본 발명에서는 개시제를 이용한 화학증착 공정(initiated Chemical Vapor Deposition, 이하 iCVD)을 이용하는 것이 바람직 하다. 상기 iCVD는 상온의 진공 기상 반응기 안에서 타겟 기관 위로 고분자의 박막이 형성되는 공정으로, 고분자의 중합반응과 필름 형성이 동시에 이루어지게 된다.

[0037] 보다 상세하게 설명하면, 진공 기상 반응기 안으로 단량체와 연쇄중합반응을 개시하는 개시제 기체 형태로 흘러주면서, 반응기 안 필라멘트를 가열하게 되면 개시제가 열분해되며 라디칼을 형성, 단량체의 vinyl group과 반응하며 중합반응이 일어나며, 이러한 중합반응과 기관에 대한 흡착과정이 동시에 일어나며 고분자 필름이 기관에 형성된다. 이때 중요한 것은 150도 정도로 가열되는 필라멘트가 진공 반응기안에서 기관과 다소 떨어져 있기 때문에 실제 기관의 온도는 상온(<50이하)를 유지하게 되어, 기관에서 열적 손상 없이 증착이 진행 될 수 있다.

[0038] 상기 iCVD는 일반적인 액상공정을 통한 필름 형성방식과 달리 용매를 사용하지 않기 때문에 매우 고순도의 필름을 얻을 수 있으며, wettability 문제 등 기존 방식에서 발생하는 문제들을 없앨 수 있는 장점이 있다.

[0039] 다음에 소개되는 실시예는 당업자에게 본 발명의 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 예로서 제공되는 것이다. 따라서 본 발명은 이하 설명된 실시예들에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있다.

#### [0040] 실시예

[0041] (1) 그래핀 산화물 분산액의 제조

[0042] 먼저 흑연 가루로부터 산화과정을 거쳐 그래핀 산화물을 제조한다. 상기 그래핀 산화물은 그 크기가 나노미터(nm) 크기부터 수 밀리미터(mm)까지 다양한 크기로 나누어져 있는데, 유기 태양전지와 유기발광 다이오드와 같은 박막 소자에 적용하기 위해 수십 나노미터 정도 크기의 그래핀 산화물을 원심분리를 이용해 추출한다.

[0043] 이후, 상기 추출된 그래핀 산화물을 분산이 용이한 용액에 완전히 분산시켜 그래핀 산화물 용액을 제조한다. 상기 분산은 그래핀 산화물은 계면활성제, 극성 용매 또는 비극성 용매에 의해 이루어질 수 있다.

[0044] (2) 그래핀 산화물의 스핀코팅

[0045] 100마이크로미터 두께의 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 기관에 상기 그래핀산화물 수용액을 도포 후, 2000~3000RPM으로 30초~1분 가량 스핀 코팅, 이를 4~12회 반복하여 10~50nm 두께의 그래핀 산화물 층 코팅, 80도 핫플레이트에서 건조한다.

[0046] (3) 불소계 고분자의 증착(iCVD)

[0047] 그래핀 산화물이 코팅된 PET를 35~40도로 유지된 기관에 위치시킨다. 단량체인 HDFDMA(Sigma-aldrich사)와 개시제인 Tertiarybutylperoxide(이하 TBPO, Sigma-aldrich사)를 1:1의 비율을 유지하며 0.1 Torr이하의 증착기 내에서 170도로 가열된 필라멘트로 반응시켜 고분자 박막을 약 100nm 두께로 형성한다.

[0048] (4) 규소계 고분자의 증착(iCVD)

[0049] 불소계 고분자가 증착된 PET를 35~40도로 유지된 기관에 위치시킨다. 단량체인 Hexavinylidisiloxane (이하 HVDS, Gelest사)와 개시제인 TBPO를 1.5:1의 비율을 유지하며 0.2Torr 이하의 증착기 내에서 170도로 가열된 필라멘트로 반응시켜 고분자 박막을 약 100nm 두께로 형성한다.

[0050] (5) 산소 플라즈마 처리

[0051] 규소계 고분자가 증착된 PET 기관을 0.1 Torr로 유지되는 RF산소 플라즈마 챔버안에서 산소를 30sccm 유량으로

흘려주며, 15W RF파워로 10초간 처리하여 친수성의 표면을 만든다. 이 후 그래핀 산화물 코팅과 고분자 코팅 과정을 반복하여 봉지막을 제조한다.

[0052] **실험예 -봉지막 수분투과도(WVTR) 실험**

[0053] 본 발명에서는 상기 실시예에서 제조된 봉지막의 수분의 유입의 차단성능을 파악하기 위해서 수분투과도(WVTR)를 측정하였다. 상기 실시예에서 제조된 봉지막은 그래핀/고분자 코팅을 2회 반복 실시하여 제조하였다.

[0054] 본 발명의 일 실시예에 따른 봉지막의 투습도를 평가에 대한 그 비교예로 PET 기판을 사용하였고, 상기 수분투과도 측정은 하기의 식을 이용하여 수행하였다.

$$\text{투습도 water vapor transfer rate (WVTR)} = \rho(\text{Ca}) \times \frac{A(\text{Ca})}{A(\text{window})} \times \frac{D(\text{Ca})}{t} \times \frac{2m(\text{H}_2\text{O})}{m(\text{Ca})}$$

$$\frac{D(\text{Ca})}{t} = \text{Ca thickness decreasing rate} \approx \frac{\text{Initial Ca thickness}}{\text{total life time}}$$

[0055]

[0056]  $A(\text{Ca}) = \text{Ca 면적 (1cm X 1cm)}$

[0057]  $A(\text{window}) = \text{실란트 부분을 제외한 노출된 봉지막 필름의 면적 (<2cm X 2cm)}$

[0058]  $m(\text{H}_2\text{O}) = \text{H}_2\text{O 분자량}$

[0059]  $M(\text{Ca}) = \text{Ca 원자량}$

[0060]  $P(\text{Ca}) = \text{Ca 밀도}$

[0061] Initial Ca thickness = Ca 초기 증착 두께, 100nm 열증착방식

[0062] Total life time = Ca이 완전히 투명해지기까지 걸리는 시간

[0063] 실험결과 PET 기판(비교예)의 수분투과도는  $0.67\text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 이었으며, 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 봉지막은  $0.28\text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 를 나타내었다.

[0064] 즉 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 봉지막이 비교예에 비하여 2배이상 투습도가 감소함을 알 수 있다.

[0065] 이상의 설명은 본 발명의 기술 사상을 예시적으로 설명한 것에 불과한 것으로서, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 본 발명의 본질적인 특성에서 벗어나지 않는 범위에서 다양한 수정 및 변형이 가능할 것이다. 따라서, 본 발명에 개시된 실시예들은 본 발명의 기술 사상을 한정하기 위한 것이 아니라 설명하기 위한 것이고, 이러한 실시예에 의하여 본 발명의 기술 사상의 범위가 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 보호 범위는 아래의 청구범위에 의하여 해석되어야 하며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 기술 사상은 본 발명의 권리범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

## 부호의 설명

[0066] 100: 플렉시블 기판

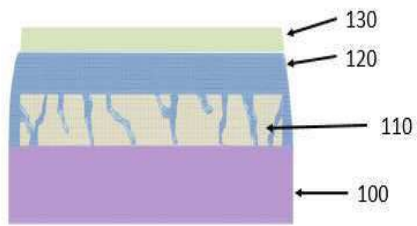
110: 그래핀산화물 막

120: 불소계 폴리머 막

130: 규소계 폴리머 막

도면

도면1



도면2



도면3

