



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2021년07월21일

(11) 등록번호 10-2280763

(24) 등록일자 2021년07월16일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C30B 29/46 (2006.01) C23C 16/30 (2006.01)

C23C 16/56 (2006.01) C30B 33/00 (2006.01)

(52) CPC특허분류

C30B 29/46 (2013.01)

C23C 16/305 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2019-0058828

(22) 출원일자 2019년05월20일

심사청구일자 2019년05월20일

(65) 공개번호 10-2020-0133508

(43) 공개일자 2020년11월30일

(56) 선행기술조사문헌

KR101703814 B1*

KR1020180036278 A*

Mechanism of Alkali Metal Compound Promoted Growth of Monolayer MoS₂(Chem. Mater. 2019, 31, 873-880. 2019.01.)*

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자

연세대학교 산학협력단

서울특별시 서대문구 연세로 50 (신촌동, 연세대학교)

(72) 발명자

조용수

서울특별시 서초구 명달로 15 서초이에스에이3차 아파트 101-107

정예슬

서울특별시 서대문구 신촌로1길 53 영하우스 303호

최홍제

서울특별시 서대문구 신촌로7안길 49, 202호

(74) 대리인

김권석

전체 청구항 수 : 총 24 항

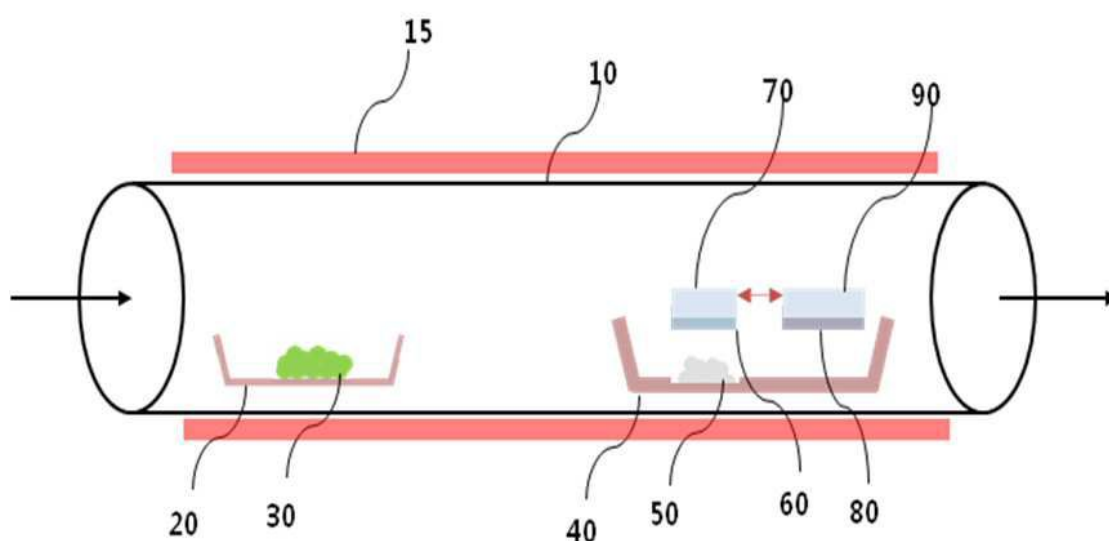
심사관 : 김광철

(54) 발명의 명칭 전이금속 디칼코게나이드 박막, 그 제조 방법 및 제조 장치

(57) 요약

본 발명은 전이금속 디칼코게나이드 박막, 그 형성 방법 및 형성 장치에 관한 것이다. 본 발명의 일 실시예에 따른 전이금속 원소와 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법은, 상기 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체를 준비하는 단계; 상기 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체를 준비하는 단계; 및 반응로 내에 상기 칼코게나이드계 전구체 및 상기 전이금속 전구체를 공급하여 성장 촉진제의 존재하에서 제 1 기판 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C23C 16/56 (2013.01)

C30B 33/00 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 20173010013340

부처명 산업통상자원부

과제관리(전문)기관명 한국에너지기술평가원

연구사업명 에너지기술개발사업

연구과제명 [RCMS]10% 효율을 갖는 2인치 웨이퍼 스케일 2D 나노소재 적층형 태양전지 기술 개발(2/4)

기 여 율 1/1

과제수행기관명 연세대학교 산학협력단

연구기간 2018.07.01 ~ 2019.04.30

명세서

청구범위

청구항 1

전이금속 원소와 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법으로서,

상기 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체를 준비하는 단계;

상기 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체를 준비하는 단계;

성장 촉진제를 포함하는 코팅층인 성장 촉진층을 반응로 내에 배치하는 단계; 및

상기 반응로 내에 상기 칼코게나이드계 전구체 및 상기 전이금속 전구체를 공급하여 상기 성장 촉진제의 존재하에서 기체 공급에 따라 제 1 기판 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계를 포함하고,

상기 성장 촉진층은 상기 기체 흐름 방향으로 상기 제 1 기판보다 선행하여 배치되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 성장 촉진제는 소듐(Na)과 상기 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 성장 촉진층은 상기 반응로 내에 배치되는 제 2 기판 상에 배치되고 탈리되어 공급되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 4

제 3 항에 있어서,

상기 성장 촉진제와 용매를 혼합하여 코팅액을 제조하는 단계; 및

상기 코팅액을 이용하여 상기 제 2 기판 상에 코팅층을 형성하는 단계

를 더 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 5

제 4 항에 있어서,

상기 코팅액에 포함되는 상기 성장 촉진제를 농도는 1 mg/mL ~ 5 mg/mL이고,

상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리는 0.3 cm ~ 1.0 cm인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 6

제 4 항에 있어서,

상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리 및/또는 상기 코팅액 내의 상기 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 상기 제 1 기판 상에 형성되는 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막의 층수 또는 면적 중 적어도 하나 이상을 제어하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 7

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 단일층(monolayer)인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 8

제 1 항에 있어서,

상기 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계는 400~1000 ℃의 결정성장 온도범위에서 화학 기상 증착법에 의해 수행되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 9

제 1 항에 있어서,

상기 칼코게나이드계 전구체는 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 칼코젠 원소를 포함하는 전구체인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 10

제 1 항에 있어서,

상기 전이금속 전구체는 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 니오븀(Nb) 및 탄탈륨(Ta)으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 전이금속 원소를 포함하는 전구체인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 11

제 4 항에 있어서,

상기 코팅층은, 스프인코팅, 딥코팅, 롤코팅, 스프인 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 12

제 1 항에 있어서,

상기 칼코게나이드계 전구체는 제 1 반응로에 공급되고,

상기 전이금속 전구체는 제 2 반응로에 공급되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법.

청구항 13

전이금속 원소와 칼코젠 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치로서,
반응로;

상기 반응로를 가열하기 위한 가열 부재;

상기 반응로 내에 상기 칼코젠 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체를 공급하는 제1 공급 수단;

상기 반응로 내에 상기 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체를 공급하는 제 2 공급 수단; 및

상기 반응로 내에 성장 촉진제를 공급하기 위한 제 3 공급 수단

을 포함하고,

상기 반응로 내에 공급된 상기 칼코게나이드계 전구체 및 상기 전이금속 전구체로부터 상기 성장 촉진제의 존재 하에서 기체 공급에 따라 제 1 기판 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막이 형성되고,

상기 제 3 공급 수단은 상기 성장 촉진제를 포함하는 코팅층인 성장 촉진층을 포함하고,

상기 제 3 공급 수단은 상기 기체 흐름 방향으로 상기 제 1 기판보다 선행하여 배치되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 14

제 13 항에 있어서,

상기 성장 촉진제는 소듐(Na)과 상기 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 15

제 13 항에 있어서,

상기 성장 촉진층은 상기 반응로 상에 배치되는 제 2 기판 상에 배치되고 탈리되어 공급되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 16

제 15 항에 있어서,

상기 제 2 기판의 상기 코팅층은, 상기 성장 촉진제와 용매를 혼합한 코팅액을 상기 제2 기판 상에 코팅함으로써 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 17

제 16 항에 있어서,

상기 코팅액에 포함되는 상기 성장 촉진제를 농도는 1 mg/mL ~ 5 mg/mL이고,

상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리는 0.3 cm ~ 1.0 cm인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 18

제 16 항에 있어서,

상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리 및/또는 상기 코팅액 내의 상기 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 상기 제 1 기판 상에 형성되는 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막의 층수 및/또는 면적을 제어하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 19

제 13 항에 있어서,

상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 단일층(monolayer)인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 20

제 13 항에 있어서,

상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 400~1000 °C의 결정성장 온도범위에서 화학 기상 증착법에 의해 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 21

제 13 항에 있어서,

상기 칼코게나이드계 전구체는 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 칼코겐 원소를 포함하는 전구체인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 22

제 13 항에 있어서,

상기 전이금속 전구체는 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 니오븀(Nb) 및 탄탈륨(Ta)으로 이루어진 군에서 선택된 어느

하나 이상의 전이금속 원소를 포함하는 전구체인 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 23

제 15 항에 있어서,

상기 코팅층은, 스핀코팅, 딥코팅, 볼코팅, 스핀 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 24

제 13 항에 있어서,

제 1 반응로 내에서 상기 칼코게나이드계 전구체의 화학 기상 반응이 일어나고, 제 2 반응로 내에서 상기 전이금속 전구체의 화학 기상 반응이 일어나는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치.

청구항 25

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 박막, 그 형성 방법 및 형성 장치에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는, 전이금속 디칼코게나이드 박막, 그 형성 방법 및 형성 장치에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 전이금속 디칼코게나이드는 원자 세 층이 단일층을 이루며 탄소 원자 한 층으로 이루어진 그래핀(Graphene)과 유사한 판상 구조를 갖는 물질이다. 준금속의 특성을 띠는 그래핀과 달리 전이금속 디칼코게나이드는 구성 물질에 따라 n-type, p-type 혹은 ambipolar 반도체의 특성을 띤다. 또한 수 나노미터 이하의 두께를 갖기 때문에 유연 및 투명 소자에의 활용성이 높아 나노 디바이스 분야에서 촉망받는 물질이다.

[0003] 그러나 전이금속 디칼코게나이드의 연구 및 산업적 이용을 위해서는 대면적 성장기술이 필수적이다. 현재까지는 주로 화학 기상 증착법(Chemical Vapor Deposition), 물리 기상 증착법(Physical Vapor Deposition), 원자층 증착법(Atomic Layer Deposition) 등을 이용하여 제작하고 있으나 균일한 고품질을 가지는 대면적 2차원 반도체를 제조하기에는 어려움이 있다.

[0004] 전이금속 디칼코게나이드의 하나인 MoS_2 는 Mo원자 한층 위아래로 S원자가 두층, 총 원자 세 층으로 이루어져 Hexagonal 구조를 가지는 판상 구조 물질이다. MoS_2 는 대표적인 2차원 반도체 물질로써 전자와 정공 모두를 carrier로 이용할 수 있는 ambipolar 특성을 가지고 있으며 주로 p-type 반도체로 사용된다. MoS_2 의 이동도는 최대 $80\text{cm}^2/\text{Vs}$ 로 보고되었으며 10^8 이상의 높은 온오프비(On-off ratio)를 가지며 투명/유연 소자에 사용할 수 있는 반도체 물질로 주목을 받고 있다. 또한 MoS_2 는 이중층(bilayer) 이상일 때 1.3eV의 간접 밴드갭(indirect bandgap)을 가지고, 단일층(monolayer)에서 1.9eV의 직접 밴드갭(direct bandgap)을 가지면서 좋은 광발광(photoluminescence) 특성을 나타내기 때문에 광전자(optoelectronic) 소자로 사용될 수 있다. 이 밖에도 MoS_2 는 광학적 또는 전기적 방법으로 물질 내의 전자 정보를 제어하는 기술에 관한 밸리트로닉스(Valleytronics) 등 다양한 분야에서 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

[0005] 단일층의 전이금속 디칼코게나이드 박막의 형성 방법은 Top-down 방식과 Bottom-up 방식이 있다. Top-down 방식으로는 기계적 박리가 가장 대표적이지만 양산에 어려움이 있고, Bottom-up 방식을 통하면 공정 과정이 복잡하거나 비용이 많이 발생한다. 기존의 기술에서는 전이금속 고체분말과 칼코젠 원소의 분말을 고온에서 증발시켜 기관에서 합성하였다.

[0006] 그러나, 이러한 종래의 합성 방법은 균일한 대면적의 필름을 제작하는데 어려움을 가지고 있다. 특히 전이금속의 균일한 증착이 어려워 기관에 균일하게 필름을 제작할 수 없었다. 즉, 반응로에서 고체분말을 배치한 후,

이를 증발시켜 기판에 합성하는데, 기판의 위치에 따라 예컨대, 농도가 달라져, 기판 전체에 걸쳐 균일한 박막을 형성할 수 없다. 또한, 이러한 방법에 따르면, 형성된 박막의 두께가 10 nm 이상으로 두꺼워지고, 단일층으로 형성하기 어렵기 때문에 2차원 물질로서 활용하는 것에 제약이 존재하였다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 본 발명이 해결하고자 하는 기술적 과제는, 제조 공정을 단순화하면서도, 고품질의 전이금속 디칼코게나이드 박막을 대면적에 걸쳐 균일하게 형성할 수 있는 방법 및 장치를 제공하는 것이다.
- [0008] 본 발명이 해결하고자 하는 다른 기술적 과제는, 대면적의 전이금속 디칼코게나이드 박막을 제조할 때 박막의 층수 및 면적을 용이하게 제어할 수 있는 방법 및 장치를 제공하는 것이다.
- [0009] 본 발명이 해결하고자 하는 또 다른 기술적 과제는, 고품질이면서 결함이 적고 대면적에 걸쳐 균일하게 형성된 전이금속 디칼코게나이드 박막을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

- [0010] 상기 기술적 과제를 해결하기 위한 본 발명의 실시예로서, 전이금속 원소와 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법으로서, 상기 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체를 준비하는 단계; 상기 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체를 준비하는 단계; 및 반응로 내에 상기 칼코게나이드계 전구체 및 상기 전이금속 전구체를 공급하여 성장 촉진제의 존재하에서 제 1 기판 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계를 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법이 제공될 수 있다.
- [0011] 일 실시예에서, 상기 성장 촉진제는 소듐(Na)과 상기 칼코겐 원소의 화합물을 포함할 수 있다.
- [0012] 일 실시예에서, 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계는, 상기 성장 촉진제를 포함하는 코팅층이 형성된 제 2 기판을 상기 반응로 내에 배치하는 단계를 포함할 수 있다.
- [0013] 일 실시예에서, 상기 성장 촉진제와 용매를 혼합하여 코팅액을 제조하는 단계; 및 상기 코팅액을 이용하여 상기 제 2 기판 상에 코팅층을 형성하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0014] 일 실시예에서, 상기 코팅액에 포함되는 상기 성장 촉진제를 농도는 1 mg/mL ~ 5 mg/mL이고, 상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리는 0.3 cm ~ 1.0 cm일 수 있다.
- [0015] 일 실시예에서, 상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리 및/또는 상기 코팅액 내의 상기 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 상기 제 1 기판 상에 형성되는 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막의 층수 또는 면적 중 적어도 하나 이상을 제어할 수 있다.
- [0016] 일 실시예에서, 상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 단일층(monolayer)일 수 있다.
- [0017] 일 실시예에서, 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계는 400~1000 °C의 결정성장 온도범위에서 화학 기상 증착법에 의해 수행될 수 있다.
- [0018] 일 실시예에서, 상기 칼코게나이드계 전구체는 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 칼코겐 원소를 포함하는 전구체일 수 있다.
- [0019] 일 실시예에서, 상기 전이금속 전구체는 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 니오븀(Nb) 및 탄탈륨(Ta)으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 전이금속 원소를 포함하는 전구체일 수 있다.
- [0020] 일 실시예에서, 상기 코팅층은, 스퍼트코팅, 딥코팅, 몰코팅, 스퍼트 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성될 수 있다.
- [0021] 일 실시예에서, 상기 칼코게나이드계 전구체는 제 1 반응로에 공급되고, 상기 전이금속 전구체는 제 2 반응로에 공급될 수 있다.
- [0022] 상기 기술적 과제를 해결하기 위한 본 발명의 다른 실시예로서, 전이금속 원소와 칼코겐 원소의 화합물을 포함하는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치로서, 반응로; 상기 반응로를 가열하기 위한 가열 부재; 상기 반응로 내에 상기 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체를 공급하는 제1 공급 수단; 상기 반응로 내에

상기 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체를 공급하는 제 2 공급 수단; 및 상기 반응로 내에 성장 촉진제를 공급하기 위한 제 3 공급 수단을 포함하고, 상기 반응로 내에 공급된 상기 칼코게나이드계 전구체 및 상기 전이금속 전구체로부터 상기 성장 촉진제의 존재하에서 제 1 기판 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막이 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치가 제공될 수 있다.

- [0023] 일 실시예에서, 상기 성장 촉진제는 소듐(Na)과 상기 칼코겐 원소의 화합물을 포함할 수 있다.
- [0024] 일 실시예에서, 상기 제 3 공급 수단은 상기 성장 촉진제를 포함하는 코팅층이 형성된 제 2 기판일 수 있다.
- [0025] 일 실시예에서, 상기 제 2 기판의 상기 코팅층은, 상기 성장 촉진제와 용매를 혼합한 코팅액을 상기 제2 기판 상에 코팅함으로써 형성될 수 있다.
- [0026] 일 실시예에서, 상기 코팅액에 포함되는 상기 성장 촉진제를 농도는 1 mg/mL ~ 5 mg/mL이고, 상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리는 0.3 cm ~ 1.0 cm일 수 있다.
- [0027] 일 실시예에서, 상기 제 1 기판과 상기 제 2 기판 사이의 거리 및/또는 상기 코팅액 내의 상기 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 상기 제 1 기판 상에 형성되는 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막의 층수 및/또는 면적을 제어할 수 있다.
- [0028] 일 실시예에서, 상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 단일층(monolayer)일 수 있다.
- [0029] 일 실시예에서, 상기 제 1 기판 상에 형성된 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 400~1000 °C의 결정성장 온도범위에서 화학 기상 증착법에 의해 형성될 수 있다.
- [0030] 일 실시예에서, 상기 칼코게나이드계 전구체는 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 칼코겐 원소를 포함하는 전구체일 수 있다.
- [0031] 일 실시예에서, 상기 전이금속 전구체는 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 니오븀(Nb) 및 탄탈륨(Ta)으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 전이금속 원소를 포함할 수 있다.
- [0032] 일 실시예에서, 상기 코팅층은, 스핀코팅, 딥코팅, 물코팅, 스핀 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성될 수 있다.
- [0033] 일 실시예에서, 제 1 반응로 내에서 상기 칼코게나이드계 전구체의 화학 기상 반응이 일어나고, 제 2 반응로 내에서 상기 전이금속 전구체의 화학 기상 반응이 일어날 수 있다.
- [0034] 상기 기술적 과제를 해결하기 위한 본 발명의 다른 실시예로서, 기판 상에 형성된 전이 금속 칼코게나이드 박막으로서, 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 단일층(monolayer)이고, 상기 전이금속 디칼코게나이드 박막은 1cm^2 이상의 면적을 갖는 전이 금속 칼코게나이드 박막이 제공될 수 있다.

발명의 효과

- [0035] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 소듐과 제2 대상의 전이금속 디칼코게나이드박막에 포함되는 칼코겐 원소의 화합물을 박막 제조시의 성장 촉진제로 사용함으로써, 제2 공정을 단순화하면서도, 전이금속 디칼코게나이드 박막을 대면적에 걸쳐 균일하게 형성할 수 있는 박막 제조 방법 및 박막 제조 장치가 제공될 수 있다.
- [0036] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 성장 촉진제의 농도 및 기판간의 간격을 조절함으로써, 대면적의 전이금속 디칼코게나이드 박막을 제조할 때 박막의 층수 및 면적을 용이하게 제어할 수 있는 박막 제조 방법 및 박막 제조 장치가 제공될 수 있다.
- [0037] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 전술한 박막 제조 방법 및 박막 제조 장치에 의해 전이금속 디칼코게나이드 박막을 제조함으로써, 고품질이면서 결함이 적고 대면적에 걸쳐 균일하게 형성된 전이금속 디칼코게나이드 박막이 제공될 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0038] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치를 나타내는 모식도이다.
- 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 전이금속 디칼코게나이드 박막의 라만 스펙트럼 및 PL 스펙트럼을 도시하는

그래프이다.

도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제를 사용하기 전후의 광학 현미경 이미지를 도시한다.

도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제의 농도 및 기관간 거리에 따른 박막의 광학 현미경 이미지를 도시한다.

도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제의 사용량에 따른 박막 성장의 변화를 나타내는 모식도이다.

도 6은 본 발명의 일 실시예에 따라 합성된 박막의 라만 매핑 및 AFM 이미지를 나타내는 도면이다.

도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제를 사용하기 전과 후의 박막의 XPS 스펙트럼을 비교하는 도면이다.

도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제 용액의 농도에 따른 박막 도메인 크기의 변화를 나타내는 광학 현미경 이미지이다.

도 9는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 박막의 크기를 나타내는 사진이다.

도 10은 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 박막의 9개의 위치에서의 라만 스펙트럼 결과를 도시하는 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0039] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명의 바람직한 실시예를 상세히 설명하기로 한다.
- [0040] 본 발명의 실시예들은 당해 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 본 발명을 더욱 완전하게 설명하기 위하여 제공되는 것이며, 하기 실시예는 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 하기 실시예에 한정되는 것은 아니다. 오히려, 이들 실시예는 본 개시를 더욱 충실하고 완전하게 하고, 당업자에게 본 발명의 사상을 완전하게 전달하기 위하여 제공되는 것이다. 도면에서 동일 부호는 동일한 요소를 지칭한다.
- [0041] 본 명세서에서 사용된 용어는 실시예를 설명하기 위하여 사용되며, 본 발명의 범위를 제한하기 위한 것이 아니다. 또한, 본 명세서에서 단수로 기재되어 있다 하더라도, 문맥상 단수를 분명히 지적하는 것이 아니라면, 복수의 형태를 포함할 수 있다. 또한, 본 명세서에서 사용되는 "포함한다(comprise)" 및/또는 "포함하는(comprising)"이란 용어는 언급한 형상들, 숫자, 단계, 동작, 부재, 요소 및/또는 이들 그룹의 존재를 특정하는 것이며, 다른 형상, 숫자, 동작, 부재, 요소 및/또는 그룹들의 존재 또는 부가를 배제하는 것이 아니다.
- [0043] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치를 나타내는 모식도이다.
- [0044] 본 발명의 일 실시예에 따른 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 장치는, 반응로(10)와, 반응로(10)를 가열하기 위해 반응로(10) 둘레에 마련된 가열 부재(15)와, 반응로(10) 내에 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체(30)를 공급하는 제1 공급 수단(20)과, 반응로(10) 내에 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체(50)를 공급하는 제2 공급 수단(40)과, 성장 촉진제를 포함하는 코팅층(60)이 형성된 제3 공급 수단(70)을 포함할 수 있다.
- [0045] 반응로(10) 내에 공급된 칼코게나이드계 전구체(30) 및 전이금속 전구체(50)로부터 성장 촉진제의 존재하에 제1 기관(90) 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)이 합성될 수 있다. 제1 기관(90) 상에 형성된 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 단일층(monolayer), 이중층, 삼중층 또는 그 이상의 층일 수 있다. 바람직하게는, 제1 기관(90) 상에 형성된 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 단일층(monolayer)이다.
- [0046] 반응로(10)는 그 내부에서 후술하는 소정의 박막 제조 프로세스가 이루어지고, 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)이 형성될 수 있다. 반응로(10)는 당업계에서 흔히 사용되고 있는 통상의 반응로이며, 본 발명은 그 구성과 관련하여 특별히 제한되지 않는다. 반응로(10)는 칼코게나이드계 전구체(30)의 화학 기상 반응이 일어나는 제1 반응로와, 전이금속 전구체(50)의 화학 기상 반응이 일어나는 제2 반응로로 분리되어 구성될 수 있다.
- [0047] 반응로(10)의 둘레에는 가열 부재(15)가 배치될 수 있다. 가열 부재(15)는 반응로(10)를 가열하여, 반응로 내부에서 박막 형성 프로세스가 이루어지도록 하기 위한 것으로서, 그 구성과 관련하여 특별히 제한되지 않는다. 예컨대, 가열 부재는 가열 코일로 구성될 수 있다. 반응로(10) 내에는 캐리어 가스 또는 퍼지 가스로서 아르곤 또는 질소 가스가 공급될 수 있다.
- [0048] 제1 공급 수단(20)은 칼코게나이드계 전구체(30)를 반응로(10) 내에 공급할 수 있다. 도 1에 도시된 바와 같

이 파우더 형태의 칼코게나이드계 전구체(30)를 수납할 수 있는 알루미늄 플레이트와 같은 수용 용기가 제 1 공급 수단(20)으로 제공될 수 있다. 다른 실시예에서, 제 1 공급 수단(20)은 기상의 칼코게나이드계 전구체(30)를 반응로(10) 내로 공급할 수 있다.

[0049] 제 2 공급 수단(40)은 전이금속 전구체(50)를 반응로(10) 내에 공급할 수 있다. 도 1에 도시된 바와 같이 파우더 형태의 전이금속 전구체(50)를 수납할 수 있는 수용 용기가 제 2 공급 수단(40)으로 제공될 수 있다. 다른 실시예에서, 제 2 공급 수단(40)은 기상의 전이금속 전구체(50)를 반응로(10) 내로 공급할 수 있다.

[0050] 제 3 공급 수단(70)은 성장 촉진제를 반응로(10) 내에 공급할 수 있다. 도 1에 도시된 바와 같이, 성장 촉진제와 용매를 혼합한 코팅액이 코팅된 제2 기판이 제 3 공급 수단(70)으로 제공될 수 있다. 다른 실시예에서는, 제 3 공급 수단(70)은 기상의 성장 촉진제 또는 파우더 형태로 성장 촉진제를 공급할 수 있다.

[0051] 코팅액에 포함되는 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 제 1 기판(90) 상에 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)의 층수(두께) 또는 면적 중 적어도 하나 이상을 제어할 수 있다. 코팅액에 포함되는 성장 촉진제의 농도는 1 mg/mL ~ 5 mg/mL이 바람직하다. 성장 촉진제의 농도가 1 mg/mL 미만이면 박막에 불연속적인 부분이 발생할 수 있고, 5 mg/mL를 초과하게 되면 박막의 두께가 너무 두꺼워질 수 있다.

[0052] 제 1 기판(90) 및 제 2 기판(70)은 사파이어 기판으로 구성될 수 있다. 사파이어 기판의 경우, SiO₂ 기판과 달리 (0001) 면에서 입방정계(hexagonal) 결정구조를 갖고 있어서, 전이금속 디칼코게나이드 박막을 결정 방향에 맞게 정렬하는 데에 유리하다. 그러나, 본 발명이 사파이어 기판에 제한되는 것은 아니며, 실리콘 기판, 수정(quartz) 기판, 산화 실리콘 기판을 비롯한 산화물 기판을 이용할 수도 있다.

[0053] 제 1 기판(90) 및 제 2 기판(70)은 소정의 간격을 두고 이격되어 배치될 수 있다. 제 1 기판(90)과 제 2 기판(70) 사이의 거리를 조정함으로써 제 1 기판(90) 상에 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)의 층수(두께) 또는 면적 중 적어도 하나 이상을 제어할 수 있다. 제 1 기판(90)과 제 2 기판(70) 사이의 거리는 0.3 cm ~ 1 cm이 바람직하다.

[0054] 칼코게나이드계 전구체(30)는 황(S), 셀레늄(Se) 및 텔루륨(Te)로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 칼코겐 원소를 포함할 수 있고, 전이금속 전구체(50)는 몰리브덴(Mo), 텅스텐(W), 니오븀(Nb) 및 탄탈륨(Ta)으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상의 전이금속 원소를 포함할 수 있다. 코팅층(60)에 포함되는 성장 촉진제는 소듐(Na)과 칼코겐 원소(제조 대상의 박막에 포함된 것과 동일한 칼코겐 원소)의 화합물을 포함할 수 있다.

[0055] 구체적으로, 황 전구체로서 다이알킬디설파이드, 다이할로디설파이드, 황 및 황화수소로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 이상인 것을 사용할 수 있고, 몰리브덴 전구체로서 칠몰리브덴산암모늄(ammonium heptamolybdate), 산화몰리브덴(MoO₃), 몰리브덴(Mo), 육플루오르화몰리브덴(MoF₆), 헥사클로로몰리브덴(MoCl₆), 티오몰리브덴산암모늄((NH₄)₂MoS₄) 및 카르보닐몰리브덴(Mo(CO)₆)로 이루어지는 군으로부터 선택된 어느 하나 이상인 것을 사용할 수 있다.

[0056] 코팅층(60)은, 스프인코팅, 딥코팅, 롤코팅, 스프인 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성될 수 있다. 바람직하게는 코팅층(60)은 드롭 캐스팅에 의해 형성하는 것이 좋다.

[0057] 일 실시예에 의하면, 제조된 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 MoS₂, MoTe₂, MoSe₂, WS₂, WSe₂, WTe₂, NbSe₂ 및 TaSe₂ 로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나일 수 있다. 바람직하게는 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 1cm² 이상의 면적을 갖는 단일층(monolayer)의 이황화몰리브덴(MoS₂) 박막일 수 있다.

[0059] 이하에서는, 상기 박막 제조 장치를 이용하여, 고품질의 전이금속 디칼코게나이드 박막을 대면적에 걸쳐 균일하게 형성하는 프로세스를 설명한다.

[0060] 본 발명의 실시예에 따른 전이금속 디칼코게나이드 박막의 제조 방법은, 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체(30)를 내에 준비하는 단계와, 전이금속 원소를 포함하는 전이금속 전구체(50)를 준비하는 단계; 및 반응로(10) 내에 칼코게나이드계 전구체(30) 및 전이금속 전구체(50)를 공급하여 성장 촉진제의 존재하에서 제 1 기판(90) 상에 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

[0061] 칼코게나이드 전구체(30)는 제 1 공급 수단(20: 수용 용기)에 의해 공급될 수 있다. 전이금속 전구체(50)는 제

2 공급 수단(40: 수용 용기)에 의해 공급될 수 있다. 또한, 성장 촉진제는 제 3 공급 수단(70: 제 2 기관)에 의해 공급될 수 있다. 일 실시예에서는, 성장 촉진제와 용매를 혼합하여 코팅액을 제조하고, 제조된 코팅액을 이용하여 제 3 공급 수단(70: 제 2 기관) 상에 코팅층(60)을 형성하고, 제 3 공급 수단을 반응로(10) 내에 배치함으로써 성장 촉진제가 공급될 수 있다.

[0062] 전이금속 디칼코게나이드 박막을 형성하는 단계는 400~1000 °C의 결정성장 온도범위에서 기상 증착법에 의해 수행될 수 있다.

[0063] 코팅층(60)은, 스핀코팅, 딥코팅, 롤코팅, 스핀 캐스팅, 흐름코팅, 분무코팅, 스크린 코팅, 스크린 인쇄, 잉크젯 및 드롭캐스팅으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나의 방법에 의해 형성될 수 있다.

[0064] 후술하는 바와 같이, 제 1 기관(90)과 제 2 기관(70) 사이의 거리 및/또는 코팅액 내의 성장 촉진제의 농도를 조정함으로써 제 1 기관(90) 상에 형성되는 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)의 층수 또는 면적 중 적어도 하나 이상을 제어할 수 있다.

[0066] 이하에서는, 칼코게나이드계 전구체(30)로서 파우더 형태의 황(S)을 사용하고, 전이금속 전구체(50)로서 파우더 형태의 산화몰리브덴(MoO_3)을 사용하는 것을 구체적인 실시예로서 설명한다. 그러나, 본 발명은 이러한 실시예에 한정되지 않는다. 또한, 성장 촉진제로서 소듐 설파이드(Na_2S)를 사용하고, 성장 촉진제와 함께 코팅액을 형성하는 용매로서는 증류수를 사용하는 것을 구체적인 실시예로서 설명한다. 그러나, 본 발명은 여기에 제한되지 않으며, 제조 대상인 전이금속 디칼코게나이드 박막을 구성하는 여하의 칼코겐 원소와 동일한 칼코겐 원소와 소듐(Na)의 화합물이 사용될 수 있다.

[0067] 먼저, 성장 촉진제인 Na_2S 를 용매인 증류수와 혼합하여 코팅액을 제조하고, 제조된 코팅액을 이용하여 제 2 기관(70) 상에 코팅층(60)을 형성한 후, 건조시킨다. 이에 따라 코팅층(60)의 표면에는 성장 촉진제인 Na_2S 가 코팅되고, Na_2S 는 박막 제조 프로세스 동안에 전이금속 디칼코게나이드 박막의 형성 프로세스에서 단일층의 대면적 박막 형성을 촉진할 수 있다.

[0068] 칼코겐 원소를 포함하는 칼코게나이드계 전구체로서 파우더 형태의 황(S)을 수용 용기(20)에 준비하고, 전이금속 전구체로서 파우더 형태의 MoO_3 (50)을 수용 용기(40)에 준비한다.

[0069] 반응로(10)를 가열 부재(15)에 의해 가열하여 칼코게나이드계 전구체(30)는 95°C ~ 300 °C로 가열하고, 전이금속 전구체(50)는 500°C ~ 1000 °C로 가열한다. 칼코게나이드계 전구체(30)를 95 °C 보다 낮은 온도로 가열하면 칼코겐 원소가 승화되지 않을 수 있고, 300 °C 보다 높으면 칼코겐 원소가 과하게 공급되어 박막이 형성되지 않을 수 있다. 바람직하게는, 110 ~ 200 °C인 것이 좋다. 또한, 전이금속 전구체를 500 °C 보다 낮은 온도로 가열하면 제조된 박막의 결정 품질이 저하될 수 있고, 1000 °C 보다 높으면 제조된 박막이 기화될 수 있다. 바람직하게는 660 °C ~ 850 °C 인 것이 좋다.

[0070] MoO_3 파우더와 S 파우더를 이용하여 MoS_2 를 합성하는 경우의 반응식은 다음과 같다.

[0071] $\text{MoO}_3 \text{ (s)} + \text{S (g)} \rightarrow \text{MoO}_{3-x} \text{ (s)} + \text{SO}_x \text{ (g)}$ --- (반응식 1)

[0072] $\text{MoO}_{3-x} \text{ (s)} + \text{S (g)} \rightarrow \text{MoS}_2 \text{ (s)}$ --- (반응식 2)

[0073] Na_2S 는 합성 대상의 칼코겐 원소(S)를 포함하면서, 단일층의 전이금속 디칼코게나이드 박막의 성장을 촉진하는 Na를 포함하는 물질이다. 따라서, 박막 성장 과정에서 Na_2S 를 성장 촉진제로 사용하면, 박막 성장 과정에서 불필요한 원소를 제공하지 않고, 오히려 칼코겐 원소를 공급함으로써, 발생가능한 칼코겐 공공 결함을 줄일 수 있다.

[0074] 여기에서, 칼코게나이드계 전구체(30)의 화학 기상 반응은 제1 반응기 내에서 수행될 수 있고, 전이금속 전구체(50)의 화학 기상 반응은 제2 반응기 내에서 수행될 수 있다.

[0075] 화학 기상 증착법은 결정성장 온도범위가 400°C ~ 1000 °C 일 수 있다. 온도가 400 °C 보다 낮으면 비정질 불순물이 잔여할 수 있고, 1000 °C 보다 높으면 제조된 박막이 기화될 수 있다.

[0076] 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 단일층 또는 다층 구조일 수 있으며, 박막의 두께는 0.1~100 nm 일 수 있다. 합성된 박막의 두께가 0.1 nm 보다 얇으면 박막이 고르게 형성되기 어려우며, 결함이 발생할 수 있고, 100

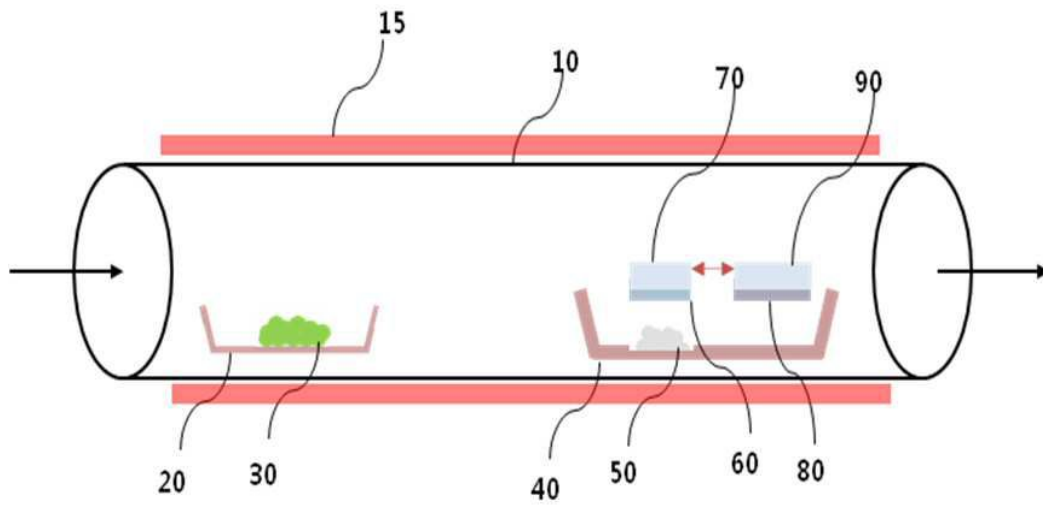
nm 보다 두꺼우면 전기적, 광학적, 열적 및 기계적 특성이 저하될 수 있다. 바람직하게는 0.1~20 nm 일 수 있으며, 더욱 바람직하게는 0.5~10 nm 일 수 있다.

- [0077] 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 트랜지스터의 반도체 활성층, 수소발생반응의 촉매, 리튬이온전지의 전극, 센서, 광감지 장치, 플렉서블 디바이스 및 커패시터로 이루어지는 군으로부터 선택된 어느 하나에 포함될 수 있다.
- [0078] 본 발명의 일 실시예에 따른 박막 제조 방법에 의하면, 전이금속 디칼코게나이드 박막(80)은 화학 기상 증착 장치의 온도, 압력, 이동 매개체의 유입 조절, 전구체의 양 조절 등 조건을 정밀하게 세팅해야 하는 번거로움이 없이 칼코겐 원소와 소듐의 화합물을 포함하는 성장 촉진제에 용매를 혼합하여 코팅층을 형성한 후 칼코게나이드계 및 전이금속 전구체를 각각 투입하여 화학 기상 증착법에 의해 박막을 형성 시킴으로써 박막의 대면적화가 가능하며, 화학 기상 증착의 공정 조건을 변경하지 않고도 코팅층의 조성, 농도 및 기판 간격을 조절함으로써 결정을 성장시켜 박막의 두께(단일층 또는 다층)를 제어할 수 있다. 특히 단일층 구조의 박막은 나노 사이즈 수준에서 두께 조절이 가능하며, 공정이 용이한 이점이 있다.
- [0079] 또한, 화학 기상 증착법을 이용하면서도 유독 가스 대신 칼코게나이드계 전구체를 사용함으로써 친환경적이며, 이를 이용하여 트랜지스터의 반도체 활성층, 고성능의 집적회로, 필드이펙트 트랜지스터, 수소 발생 반응(hydrogen evolution reaction)의 촉매 전극, 리튬 이온 전지의 전극, 센서, 광감지 장치, 플렉서블 디바이스 및 커패시터 등의 부품에 활용될 수 있다.
- [0081] 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 전이금속 디칼코게나이드 박막의 라만 스펙트럼 및 PL 스펙트럼을 도시하는 그래프이다.
- [0082] 라만 스펙트럼의 결과는 제조된 MoS₂ 박막의 두 메인 피크 사이의 거리를 보여주며, 이 피크 사이의 거리를 통해 MoS₂ 박막의 두께를 측정할 수 있다. 도 2의 라만 스펙트럼에서 Na₂S 성장 촉진제를 사용한 경우의 두 피크 사이의 거리는 19 cm⁻¹ ~ 20 cm⁻¹ 인데, 이것은 MoS₂ 박막이 단일층인 것을 보여준다. 즉, 본 발명의 일 실시예에 따르면, MoS₂ 박막을 단일층의 형태로 대면적에 걸쳐 균일하게 형성할 수 있다.
- [0083] PL 스펙트럼 그래프를 보면, 성장 촉진제를 사용한 경우(적색선)가 성장 촉진제를 사용하지 않은 Pristine의 경우(흑색선) 보다 현저히 증가된 PL 강도를 나타내고 있다. 이것은 칼코겐 원소와 소듐을 포함하는 성장 촉진제의 존재하에 박막이 합성됨으로써 성장 촉진제가 없는 경우에 발생하는 칼코겐 공공 결함을 줄이면서 화학 양론에 가까운 조성의 양질의 박막이 합성되었기 때문이다.
- [0085] 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제를 사용하기 전후의 광학 현미경 이미지를 도시한다.
- [0086] 도 3을 참조하면, 성장 촉진제를 사용하기 전(Pristine)에는 10 μm 보다 작은 크기의 삼각형 모양의 MoS₂ 박막의 결정이 형성되고 있으나, Na₂S의 성장 촉진제를 사용한 경우에는 1 cm 이상 연속하는 MoS₂ 박막의 결정이 형성되었음을 파악할 수 있다. 한편, 성장 촉진제를 사용하지 않는 경우에는, 박막 제조 시간을 늘리더라도 MoS₂ 박막의 결정의 크기가 증가하지 않고, 단일층이 아니라 이중층, 삼중층 등의 복수층으로 두께가 증가하였다. 그러나, 성장 촉진제를 사용한 경우에는 성장 촉진제의 농도 및 기판간 거리를 적절히 조절함으로써 1cm² 이상의 면적을 갖는 단일층 MoS₂ 박막을 얻을 수 있었다.
- [0088] 도 4는 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제의 농도 및 기판간 거리에 따른 박막의 광학 현미경 이미지를 도시한다.
- [0089] 구체적으로, 도 4는 기판간 거리를 0.3 cm, 0.5 cm 및 1.0 cm로 변화시키고, Na₂S 수용액의 농도를 15 mg/3 mL, 10 mg/3 mL 및 5 mg/3 mL로 변화시킨 9개의 샘플에 대한 박막의 광학 현미경 이미지이다.
- [0090] 성장 촉진제의 영향이 없어질 정도로 기판간 거리가 너무 먼 경우(1cm 이상)에 일부 비연속적인 박막이 형성되었다. 또한, 성장 촉진제의 영향이 너무 많은 경우(농도가 높거나, 기판간 간격이 작은 경우)에 박막 일부에서 MoO₃ 파티클 또는 MoS₂ 파티클이 발생되거나, 다중층의 MoS₂ 박막이 관찰되었다. 9개의 샘플 중에는 기판간 간격이 0.5 cm이고, Na₂S 농도가 5 mg/3 mL인 경우에 가장 균일하면서 대면적의 단일층 MoS₂ 박막을 얻을 수 있었다.

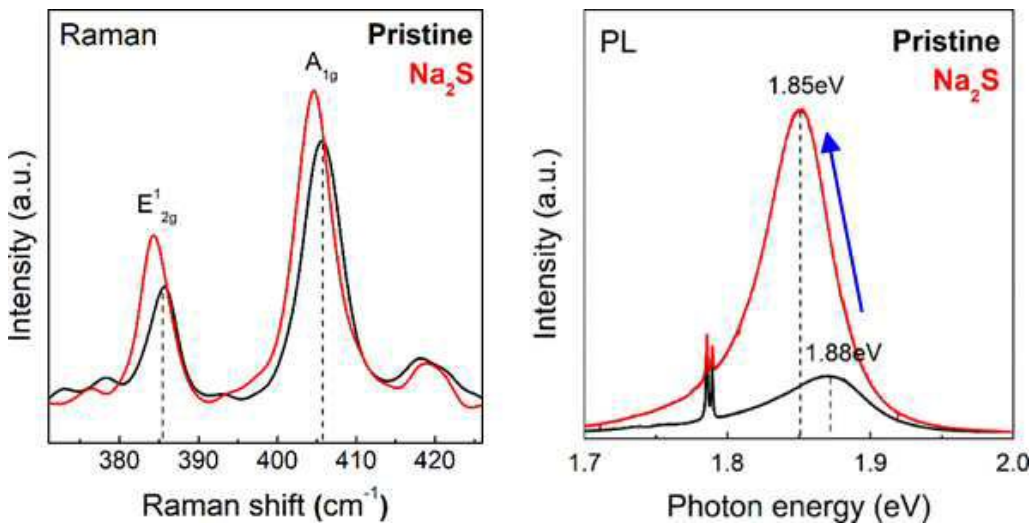
- [0092] 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제의 사용량에 따른 박막 성장의 변화를 나타내는 모식도이다.
- [0093] 성장 촉진제로서 Na_2S 가 사용되지 않은 경우(가장 좌측)에는 칼코겐 공공 결함에 의해 MoS_2 가 일정 크기 이상으로 성장하지 못하고, 삼각형 모양으로 다중층으로 합성된다.
- [0094] 성장 촉진제로서 Na_2S 가 적절한 양으로 사용된 경우(가운데)에는 성장 촉진제에 의해 칼코겐 공공 결함이 적어지기 때문에, 고품질의 균일하면서도 대면적의 단일층 박막이 합성될 수 있다.
- [0095] 성장 촉진제로서 Na_2S 가 과다한 양으로 사용된 경우에는, MoS_2 의 단일층이 포화된 후에도 이중층으로 합성되기 때문에, 2차원 재료로서의 막 품질이 떨어지게 된다.
- [0097] 도 6은 본 발명의 일 실시예에 따라 합성된 박막의 라만 매핑 및 AFM 이미지를 나타내는 도면이다.
- [0098] 도 6의 좌측 이미지는 합성된 MoS_2 박막의 E_{2g}^1 피크에 해당하는 라만 매핑 이미지이다. 전체 박막에 걸쳐서 균일한 E_{2g}^1 피크가 관찰되고 있으므로, MoS_2 박막이 균일하게 기판 상에 형성된 것을 확인할 수 있다. 또한, 도 6의 우측 이미지는 MoS_2 박막의 AFM 이미지이다. 박막의 두께가 대략 1.0 nm이므로 단일층의 MoS_2 박막이 형성된 것을 확인할 수 있다.
- [0100] 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제를 사용하기 전과 후의 박막의 XPS 스펙트럼을 비교하는 도면이다.
- [0101] 화학양론을 만족하기 위해서는 1개의 Mo^{4+} 와 2개의 S^{2-} 가 MoS_2 화합물을 형성해야 하는데, 성장 촉진제를 사용하지 않은 경우(Pristine), 불순물인 MoO_3 에 해당하는 Mo^{6+} 성분의 피크가 상당한 강도로 관찰되는 반면, 성장 촉진제 Na_2S 를 사용한 경우, Mo^{6+} 성분의 피크의 강도가 현저하게 줄어든 것을 확인할 수 있다. 또한, 샘플 박막의 XPS 스펙트럼으로부터 성장 촉진제를 사용하지 않은 경우(Pristine)에 S/Mo의 비율이 1.6이고, 성장 촉진제 Na_2S 를 사용한 경우에 S/Mo의 비율이 화학양론에 근접한 1.9로 나타났다. 성장 촉진제를 사용한 경우에는 칼코겐 공공 결함이 줄어들어 칼코겐 원소인 S의 함유량이 높아지기 때문에 화학양론에 근접한 S/Mo의 비율이 얻어졌다.
- [0103] 도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 성장 촉진제 용액의 농도에 따른 박막 도메인 크기의 변화를 나타내는 광학 현미경 이미지이다.
- [0104] 성장 촉진제의 농도가 낮으면 핵형성 사이트(nucleation site)의 개수가 적어지므로, 성장시의 삼각형 형상의 결정의 도메인이 커지고, 성장 촉진제의 농도가 높으면 핵형성 사이트의 개수가 많아지므로, 성장시의 삼각형 형상의 결정의 도메인이 작아지는 것을 확인할 수 있다. 너무 농도가 낮아지는 경우, 즉 5 mg/6 mL의 농도에서는 일부 비연속적인 박막이 형성되는 것이 확인된다.
- [0106] 도 9는 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 박막의 크기를 나타내는 사진이다. Na_2S 를 성장 촉진제로 사용하여 1cm x 1.5cm의 면적의 단일층 MoS_2 박막이 제조되었다.
- [0108] 도 10은 본 발명의 일 실시예에 따라 제조된 박막의 9개의 위치에서의 라만 스펙트럼 결과를 도시하는 도면이다. 9개의 위치에 따른 라만 피크가 일정하게 형성되는 것으로부터, 박막의 전체에 걸쳐서 균일한 품질을 MoS_2 박막이 형성되었음을 확인할 수 있다.
- [0110] 이상에서 설명한 본 발명이 전술한 실시예 및 첨부된 도면에 한정되지 않으며, 본 발명의 기술적 사상을 벗어나지 않는 범위 내에서 여러가지 치환, 변형 및 변경이 가능하다는 것은, 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 있어 명백할 것이다.

도면

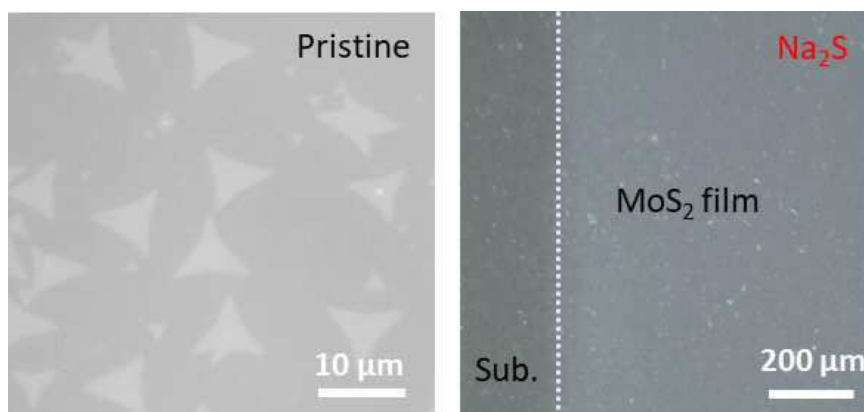
도면1



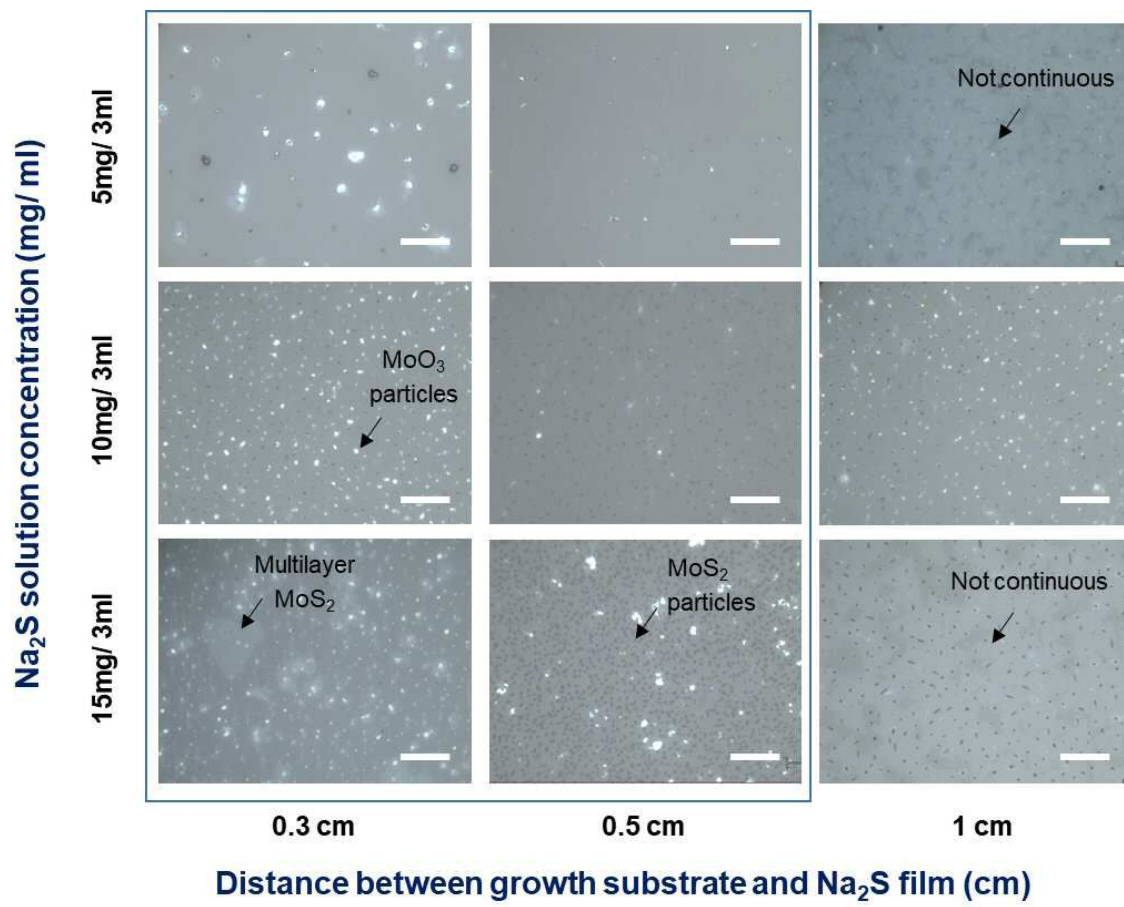
도면2



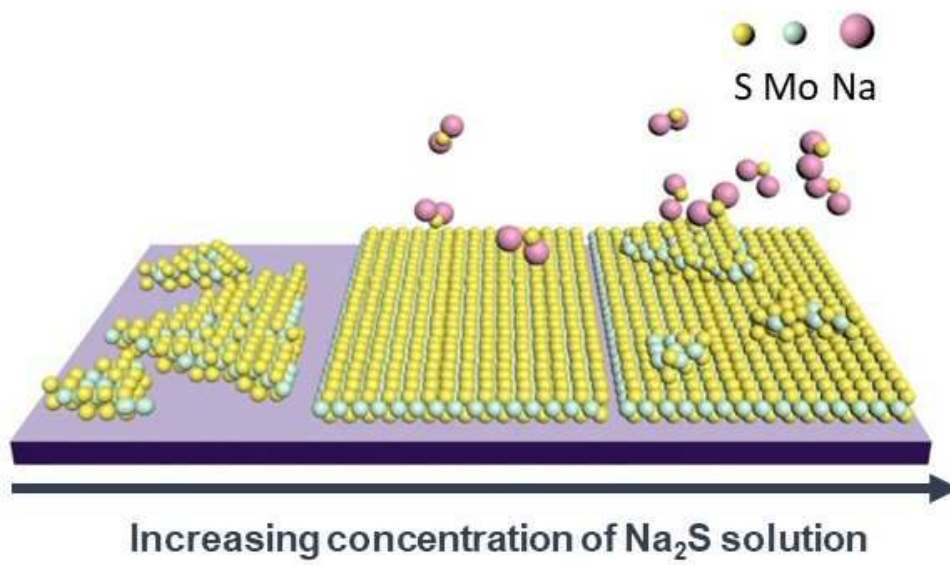
도면3



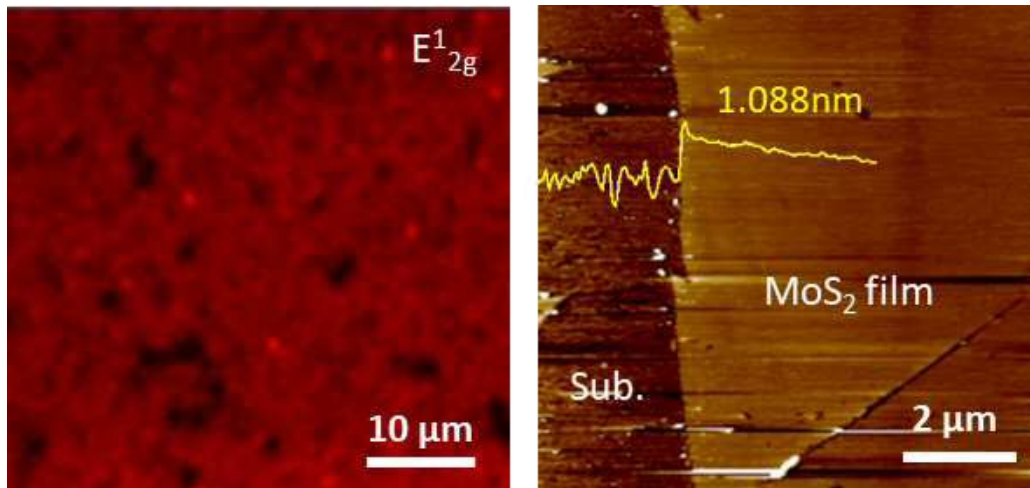
도면4



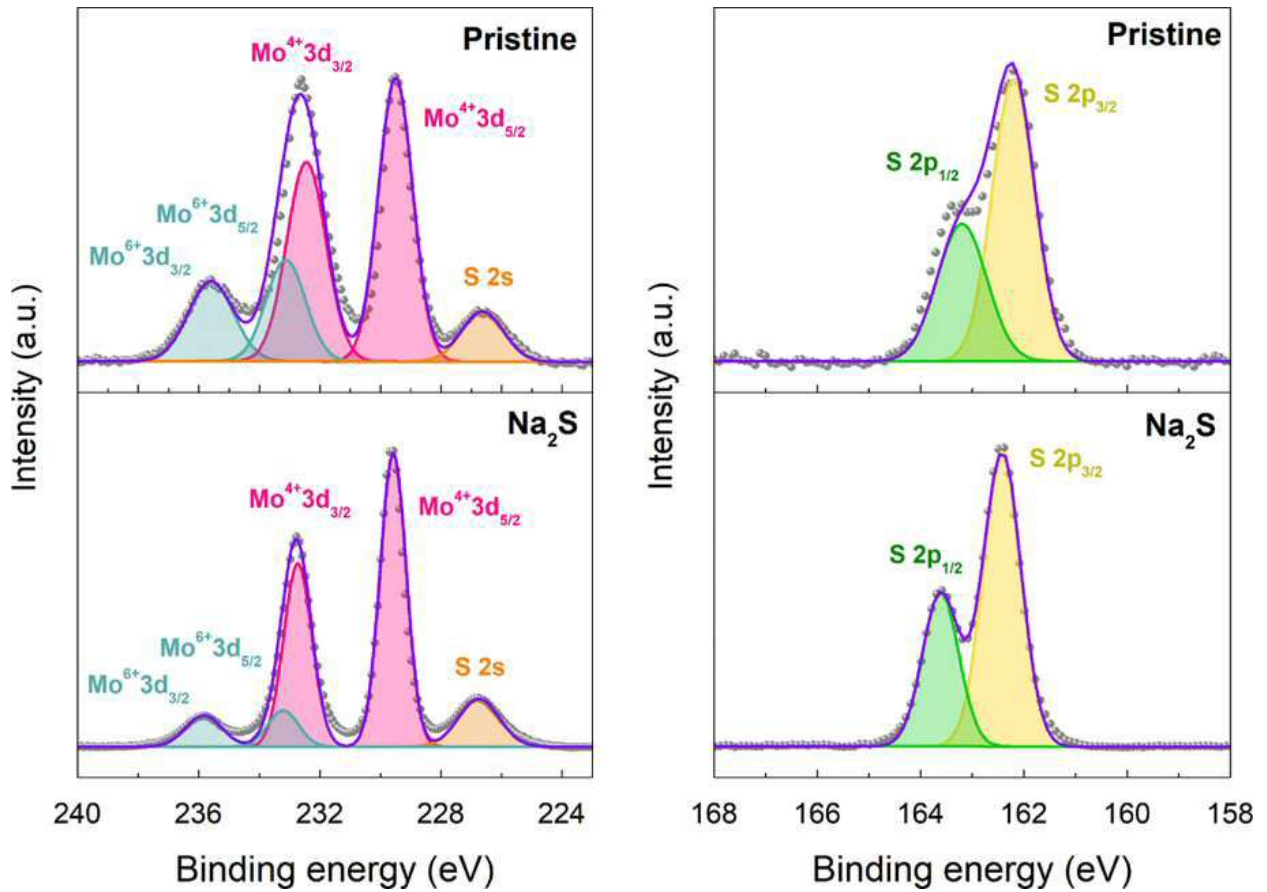
도면5



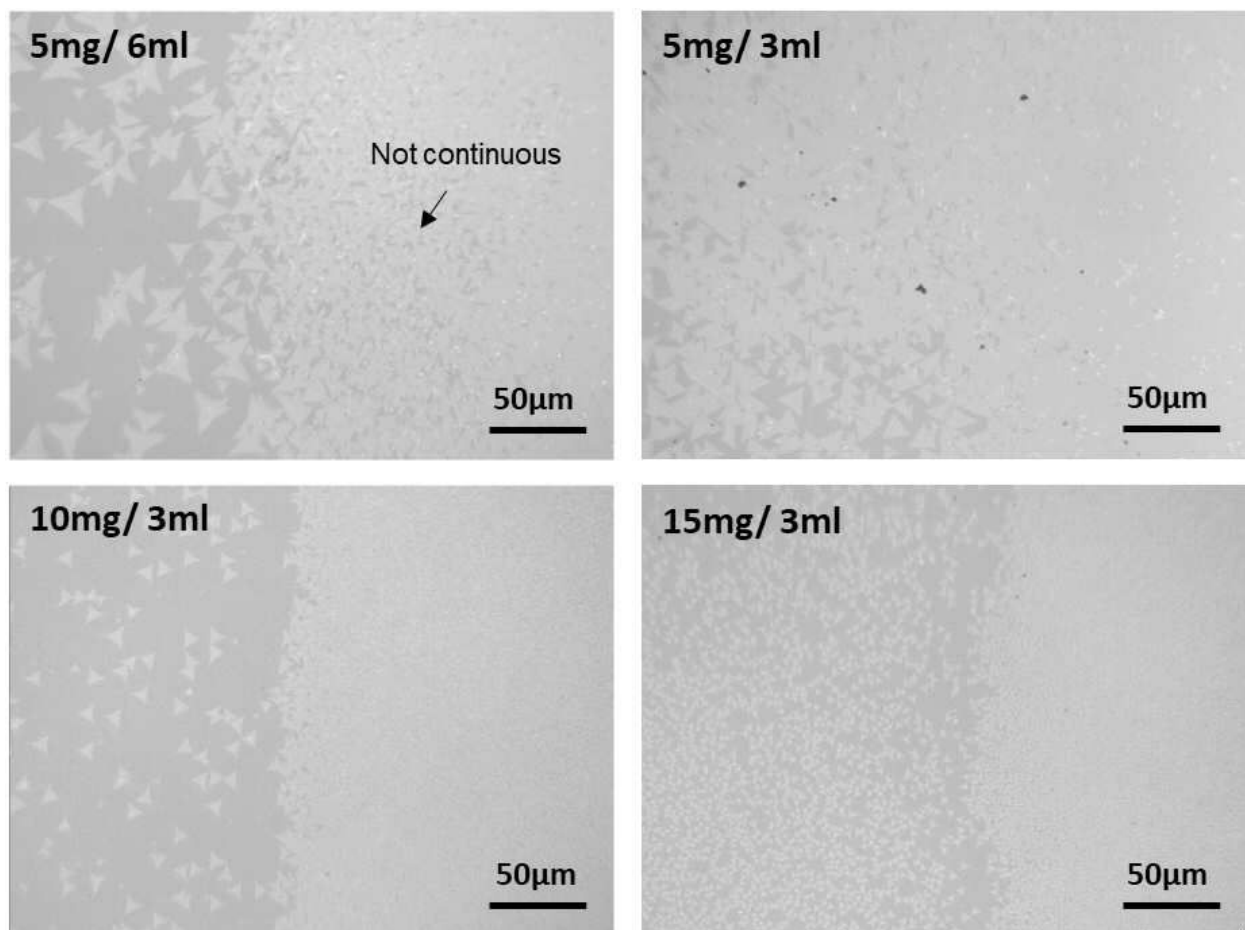
도면6



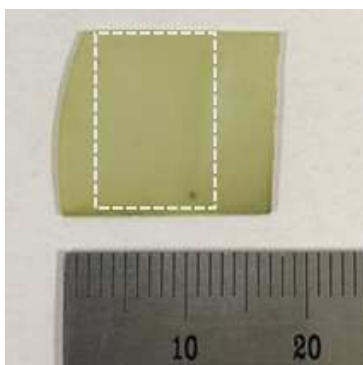
도면7



도면8



도면9



도면10

