

특집 : 박막 전사 기술

나노박막 전사 방법 및 계면 파괴 역학

강수민 · 김택수[†]

한국과학기술원 기계공학과

Nanofilm Transfer Methods and Interfacial Fracture Mechanics

Sumin Kang and Taek-Soo Kim[†]

Department of Mechanical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST),
291, Daehak-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34141, Korea

(Received August 25, 2020: Corrected September 23, 2020: Accepted September 29, 2020)

초 록: 기능성 나노박막을 손상 없이 목표기판으로 옮기는 전사 기술은 나노박막 기반의 차세대 응용 제품 개발을 위한 초석이다. 본 논문에서는 최근 나노박막 전사의 연구 동향을 박막-기판 계면의 박리 원리에 따라 습식 식각 전사, 전기화학적 박리, 기계식 전사 방법 세 가지로 분류하여 간단하게 살펴볼 것이다. 더 나아가, 손쉽고, 기판 재활용이 가능하며, 광범위한 적용 가능성을 가지고 있어 유망 기술로 간주되는 기계식 전사 방법에 대하여 파괴 역학적 관점에 초점을 맞추어 다룰 것이다. 마지막으로, 나노박막의 기계식 전사 방법의 기술 성숙도를 향상시키기 위한 향후 도전 과제와 방향성에 대하여 고찰하고자 한다.

Abstract: Transferring of functional nanofilms onto target substrates is a cornerstone to developing nanofilm-based next-generation applications. In this work, we provide a brief review of recent advances on nanofilm transfer methods by categorizing them into the following three methods: wet-etching transfer, electrochemical delamination, and mechanical transfer. Furthermore, the mechanical transfer method, which is regarded as a promising technology owing to its facile, substrate recyclable, and widely applicable process, is overviewed by focusing on fracture mechanics approaches. Finally, the perspectives and challenges for future development of the mechanical transfer method are discussed.

Keywords: Nanofilm, Transfer, Adhesion, Crack driving force, Crack deflection

1. 서 론

우수한 기계적,¹⁾ 전기적,²⁾ 열적,³⁾ 광학적⁴⁾ 특성을 지니고 있는 수 나노미터 두께의 박막과 폴리머(polymer) 기판의 통합은 웨어러블(wearable), 바이오-메디컬(bio-medical) 디바이스(device) 등의 차세대 응용 제품 개발을 가능하게 한다.⁵⁻¹³⁾ 하지만, 고온 제작 환경, 패터닝(patterning) 공정, 재료의 제한성을 고려할 때, 유연하고 열 안정성이 낮은 폴리머 기판에 직접적으로 나노박막을 증착하는 것은 매우 도전적이다. 먼저, 금속, 무기물, 그래핀(graphene), 이차원 전이 금속 디칼코게나이드(transition metal dichalcogenides, TMDs) 등의 나노박막을 증착하기 위해서 CVD(chemical vapor deposition), PVD(physical vapor deposition), ALD(atomic layer deposition) 등 고온 공정을 요구하는 방법들이 활용된다.¹⁴⁻¹⁶⁾ 또한, 나노박막 패터닝

을 위해 추가적인 리소그래피(lithography) 공정을 수행해야 하며,¹⁷⁾ 더욱이 합성 그래핀과 같은 이차원 물질은 구리(Cu), 니켈(Ni) 등의 특정 촉매 기판의 활용이 요구된다.¹⁶⁾ 위와 같은 이유로, 실리콘 웨이퍼(Si wafer) 또는 촉매 성장기판에 제작된 나노박막을 목표기판으로 옮기는 전사(transfer) 기술은 나노박막 응용의 핵심이다(Fig. 1).

나노박막 전사 방법은 박막을 성장기판으로부터 박리하는 방식에 따라 습식 식각 전사(wet-etching transfer), 전



Fig. 1. Nanofilm transfer: key for applications.

[†]Corresponding author
E-mail: tskim1@kaist.ac.kr

© 2020, The Korean Microelectronics and Packaging Society

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

기화학적 박리(electrochemical delamination), 기계적 전사(mechanical transfer) 세가지 방법으로 분류할 수 있다. 본 논문에서는 각각의 전사 방법에 대한 메커니즘과 장단점을 간단하게 살펴볼 것이다. 더 나아가, 간단하고, 기관의 재활용이 가능하며, 광범위하게 적용 가능한 특성을 가지고 있는 기계적 전사 방법에 대한 연구를 파괴 역학적 관점에서 논하고, 향후 도전 과제와 방향성을 제안하고자 한다.

2. 나노박막 전사 방법

2.1 습식 식각 전사 방법

습식 식각 전사 방법은 나노박막이 성장된 희생층이나 촉매 기관을 식각액(etchant)을 사용하여 제거함으로써 나노박막을 분리하는 방법이다. 대표적인 습식 식각 전사 방법으로는 희생층을 식각하여 epitaxial 성장 박막을 박리하는 방법,¹⁸⁻²¹⁾ 그래핀 및 TMDs와 같은 이차원 재료를 촉매 기관으로부터 박리하는 방법 등에 대한 연구가 보고되고 있다.^{5,22,23)} 특히, 이차원 물질은 매우 얇은 두께로 인하여 공정 중 손상이 발생할 개연성이 높다. 습식 식각 전사 공정에서는 이를 방지하기 위해 통상적으로 미리 폴리머 희생층을 도포하고 성장기관 제거 및 목표기관으로 전사 후, 마지막 단계에서 폴리머 희생층을 제거한다(Fig. 2). 이때 폴리머 희생층은 아세톤(acetone) 용액으로 제거할 수 있는 PMMA(poly methyl methacrylate)가 많이 활용된다.²⁴⁾

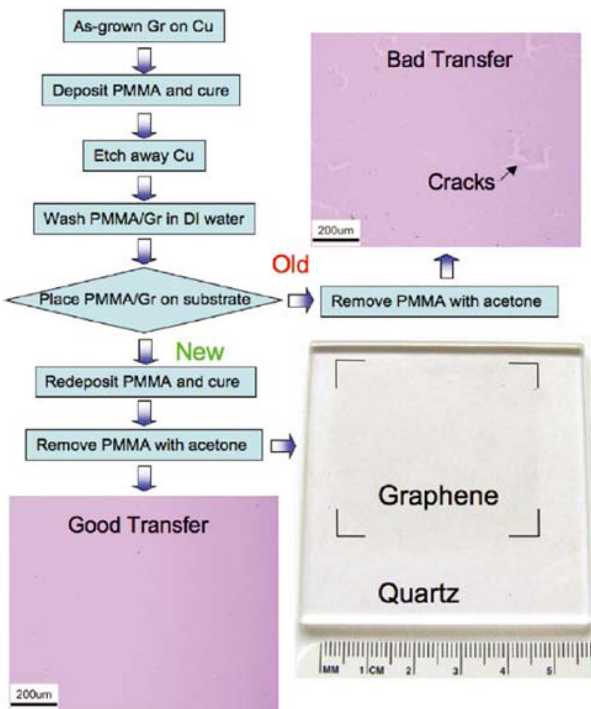


Fig. 2. Wet-etching transfer process of graphene. Reprinted with permission from.²²⁾ Copyright 2009, American Chemical Society.

폴리머 희생층이 전사 공정 중 이차원 재료를 보호하는 역할을 하지만, 다른 한편으로는 폴리머 희생층을 제거하는 단계에서 잔여물(residue)이 남게 되고, 이는 나노박막의 우수한 성질을 저하시키는 장애물이 된다.²⁵⁾ 따라서 잔여물이 최대한 남지 않는 깨끗한(clean) 전사를 위한 연구가 Pentacene,²⁶⁾ Polyvinyl Alcohol(PVA),²⁷⁾ Rosin,²⁸⁾ Paraffin²⁹⁾ 등 다양한 희생층 물질을 통해 이루어 왔다(Fig. 3). 비록 많은 연구가 성공적으로 수행되어 왔지만, 대면적 나노박막의 전사 공정에서 완전한 폴리머 잔여물의 제거는 여전히 도전적인 현황이다.

한편, Bac 등³⁰⁾은 습식 식각 전사 방법에 roll-to-roll (R2R) 공정 및 열 박리 테이프(thermal release tape)를 이용하여 대면적 그래핀 생산 및 전사를 가능하게 하였다. 열 박리 테이프를 이용한 대면적 그래핀 전사 방법은 산업화까지 이루어져 그래핀 연구의 많은 발전을 가져왔다. 하지만, 열 박리 테이프의 잔여물 문제, 그리고 R2R 공정에서의 균열(crack) 및 주름(wrinkle) 형성 문제 등은 해결해야 할 과제로 남아 있다.³¹⁾

무엇보다 습식 식각 전사 방법은 식각액을 사용하는 과정에서 생산비용의 큰 부분을 차지하는 고품질의 성장기관¹⁶⁾을 다시 나노박막 성장을 위해 사용할 수 없고, Fig. 2의 순서도와 같이 여러 단계의 공정이 필요하여 많은 시간이 소요된다는 단점이 있다. 또한 성장기관 식각 공정이나 폴리머 희생층 제거 공정 중 화학 약품을 이용하기 때문에 나노박막에 화학적 손상 및 의도치 않은 도핑(doping)을 유발할 수 있고, 화학 폐기물 생성에 의한 환경 오염 문제 등이 발생할 수 있다.

2.2 전기화학적 박리 방법

전기화학적 박리법은 수용액에 음극이 되는 나노박막-성장기관과 양극이 되는 물질을 담그어 성장기관에 환원반응을 일으켜 발생하는 기포를 통해 나노박막을 분리하는 방법이다(Fig. 4).³²⁻³⁴⁾ 이러한 방법은 습식 식각 전사법의 단점인 성장기관 제거 공정을 필요로 하지 않아 기관을 나노박막 성장을 위해 재사용할 수 있다는 장점

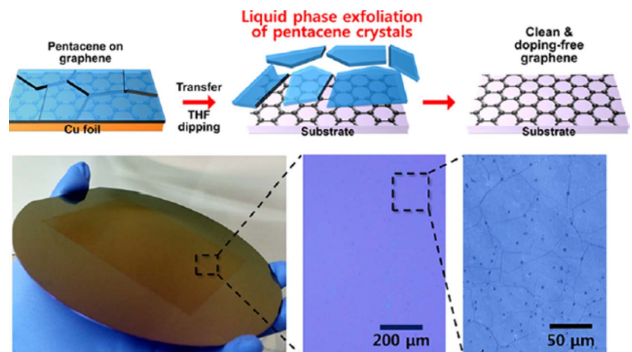


Fig. 3. Utilization of pentacene sacrificial layer for clean transfer of graphene. Reprinted with permission from²⁶⁾. Copyright 2015, American Chemical Society.

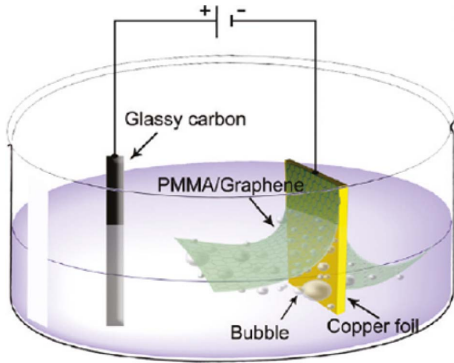


Fig. 4. Schematic illustration of electrochemical delamination method. Reprinted with permission from.³²⁾ Copyright 2011, American Chemical Society.

이 있다. 또한 R2R공정을 접목하여 대면적화의 가능성이 검증 되었다.³⁵⁻³⁷⁾ 한편, 환원 반응에서 발생하는 기포가 나노박막에 물리적인 손상을 가하는 문제점이 있어, Cherian 등³⁸⁾은 금속 성장기판 위에 native oxide 층을 이용하여 기포를 발생시키지 않고 박막을 전사할 수 있는 전기화학적 박리법을 보고하였다. 하지만, 전기화학적 박리 방법은 여전히 전사과정 중에 PMMA 등의 나노박막을 보호하기 위한 폴리머 희생층을 필요로 하며, 액체를 활용한 공정이기 때문에 나노박막에 의도하지 않은 도핑 효과를 야기할 수 있다. 또한, 금속 등 환원반응을 발생시킬 수 있는 성장기판을 활용해야 하기 때문에 적용 가능한 재료가 국한된 한계점이 있다.

2.3 기계식 전사 방법

기계식 전사 방법은 나노박막-성장기판의 계면 접합 에너지(interfacial adhesion energy, G_C) 보다 더 큰 균열 진 전력(crack driving force, G)을 외부로부터 인가하여 박막을 목표기판으로 옮기는 방법이다. 따라서, 균열 진 전력 G 와 나노박막-성장기판의 계면 접합 에너지 G_C 의 경쟁은 기계식 전사 방법의 주요 메커니즘이라고 할 수 있다 (Fig. 5).

$$\text{Transfer is achieved when, } G > G_C \tag{1}$$

기계식 전사 방법은 접착제를 도포하여 나노박막을 원하는 기판으로 전사하거나,³⁹⁾ PDMS(polydimethylsiloxane)와 같은 점탄성(viscoelastic) 특성을 가지는 스탬프(stamp)를 이용한 전사-인쇄(transfer-printing) 방식⁴⁰⁾으로 진행된다. 이러한 기계식 전사 방식은 여러 장점을 가지고 있다. 먼저, 공정이 간단하여 손쉽게 수행 가능하고, 값비싼 성장기판의 재활용이 가능하다(Fig. 6).³⁹⁾ 또한 전기화학적 박리 방법과 다르게 적용할 수 있는 나노박막 재료가 국한되어 있지 않고 광범위하며, 곡면 등 다양한 형상의 목표기판에도 적용할 수 있다.^{41,42)} 특히, 재료의 새로운 기능성과 특성을 구현할 수 있어 최근 각광을 받고 있는 나노박막의 반데르발스 이중 구조(van der Waals

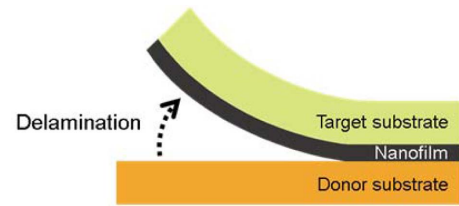


Fig. 5. Mechanical transfer method by competition between G and G_C .

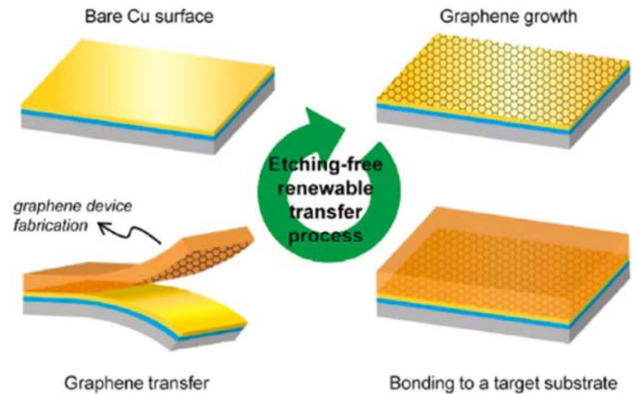


Fig. 6. Schematic illustration of renewable mechanical transfer process. Reprinted with permission from.³⁹⁾ Copyright 2012, American Chemical Society.

heterostructures, vdWHs)를 제작하기 위한 layer-by-layer 적용에 있어서, 목표기판 전체를 액체에 담그어야 하는 습식 식각 전사⁴³⁾ 또는 전기화학적 박리보다 더 유리한 접근법이라고 할 수 있다.⁴⁴⁾

반면, 기계식 전사 방법의 도전적인 측면은 나노박막의 접합력을 정밀하게 제어하는 것이 어렵다는 것이다. 그 이유는, 나노박막의 접합 특성에는 수 나노미터 두께로 인한 표면에 작용하는 힘, 작은 굽힘 강성에 의한 접촉면적 증가, 계면에서의 전자 밀도에 의한 전자기력 등 다양한 영향 요인들이 있으며, 이들은 비선형적으로 작용하기 때문이다.^{39,45,46)} 이러한 접합력 정밀 제어의 어려움은 나노박막이 성장기판으로부터 박리되지 않거나 박리가 되더라도 박막에 손상이 유발되는 문제점을 야기할 수 있다. 따라서, 기계식 전사 방법의 기술 성숙도를 향상시키고 나노박막을 성공적으로 전사하기 위해서는, 역학적 해석을 기반으로 나노박막의 계면 파괴 거동에 대한 심도 있는 이해가 수반되어야 한다.

3. 기계식 전사의 파괴 역학적 접근 및 고찰

기존 기계식 전사 방법에 대한 연구들은 Eq. (1)을 기반으로, 균열 진 전력 G 를 박리 속도, 온도, 표면 구조, 하중 모드, 모세관력 등 여러 요인들을 통해 제어하는 방법, 그리고 나노박막-성장기판 계면의 접합 에너지 G_C 를 액체를 이용하여 제어하는 방법의 두 가지 접근법을 통해 연구가 진행되어 왔다. 본 논문에서는 이러한 기계식

전사 방법의 최근 발전 동향을 G 를 제어하는 방법, 그리고 G_c 를 제어하는 방법으로 나누어 살펴볼 것이다. 이에 더하여, 기계식 전사 연구에서는 충분한 고려가 되어 있지 않지만 박막의 계면 파괴 및 박리 거동에서 중요한 요소인 균열 휨(crack deflection)이 나노박막 전사에 미칠 수 있는 영향을 고찰할 것이다.

3.1 균열 진전력 G 제어 방법

나노박막의 기계식 전사 방법을 성공적으로 수행하기 위해 균열 진전력을 제어하는 방법에 대한 많은 연구가 이루어졌다. 균열 진전력 제어 기술을 영향 인자에 따라 분류하면 박리 속도, 온도, 기하학적 구조, 하중 모드 (loading mode), 모세관력(capillary-force) 등으로 나눌 수 있다.

3.1.1 박리 속도

2006년 Meitl 등⁴⁰⁾은 점탄성 물질을 통해 박리를 수행할 때, 균열 진전력 G 가 박리 속도에 의존하는 특성을 이용하여 박막의 전사-인쇄 공정을 개발하였다. 이 연구 이래로, 박리 속도를 통해 G 를 제어하는 방법이 큰 주목을 받았으며, 속도 의존성 전사 공정에 대한 많은 후속 연구를 이끌었다고 볼 수 있다. 이 방법은 박리 속도가 빨라질수록 점탄성 스탬프와 나노박막 사이 균열 진전력 G 가 증가하여 나노박막을 성장기관으로부터 박리할 수 있는 원리를 이용한다(Fig. 7). 즉, 성장기관 위의 나노박막을 스탬프로 전사할 때는 빠른 속도로 박리를 수행하고, 스탬프 위로 전사된 나노박막을 목표기관으로 인쇄할 때는 느린 속도로 박리를 수행한다. 이러한 원리는 이차원 물질에 대해서도 적용되어 박리 속도 증가에 따른 균열 진전력 증가 경향성과 이를 통한 전사 연구가 여러 논문에서 보고되고 있다.⁴⁷⁻⁵¹⁾

한편, Feng 등⁵²⁾은 박리 속도에 대한 균열 진전력 G 의 변화 모델을 실험적인 경험식을 이용하여 제시하고, 박리 속도가 증가할수록 G 가 증가하는 이유를 에너지 소실(energy dissipation) 정도가 증가하기 때문이라고 설명하였다(Fig. 8). 하지만, 박리속도에 따른 G 의 변화에 대한 정확한 메커니즘은 아직까지 완벽하게 밝혀 지지 않은 것으로 보인다.⁵³⁾ 일 예로, Na 등⁴⁸⁾은 합성 그래핀의 속도 의존성 박리 경향과 G 의 변화 양상을 이중외팔보(double cantilever beam, DCB) 파괴 시험을 통해 확인하

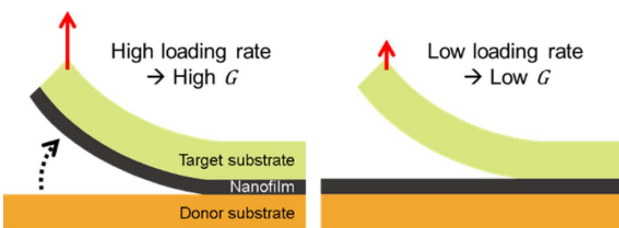


Fig. 7. Mechanical transfer of nanofilms by rate effect.

였지만, 함께 진행한 시뮬레이션 결과는 에너지 소실의 정도는 미미하다는 것을 보여 주었고 다른 메커니즘에 대한 추가 연구가 필요하다고 고찰하였다. 이처럼 속도 의존성 균열 진전력 변화는 나노박막 전사 분야에서 통용되며, 응용되고 있는 현상이지만 기본적인 메커니즘을 완전히 밝히기 위한 후속 연구가 필요한 것으로 파악된다.

3.1.2 온도

온도 또한 나노박막 전사에서 균열 진전력 제어에 효과적으로 활용될 수 있다. 대표적으로, 스탬프-나노박막 구조에 열을 가하면 두 재료의 열팽창 계수 차이로 인하여 균열 진전력 G 가 발생하게 되어 손쉬운 박리가 가능해지는 현상을 이용한 전사 기술들이 보고되었다.^{54,55)} 최근에는 열을 가하여 폴리머 목표기관을 부분적으로 녹이는 방법으로 폴리머-그래핀 계면의 반데르발스 상호작용(interaction)을 강화하고, 이를 통해 그래핀을 전사하는 방법도 보고되고 있다(Fig. 9).⁵⁶⁾

3.1.3 표면 구조

스탬프의 특정 표면 구조 형성과 박리 속도 의존성을 동시에 이용하여 균열 진전력을 효과적으로 제어하는 방법이 보고되었다(Fig. 10).⁵⁷⁻⁶¹⁾ 본 메커니즘에 속하는 전사 연구들은, 기하학적 효과를 통한 계면 접촉 형성 연구에서 지속적인 관심을 받고 있는 게코 도마뱀(gecko

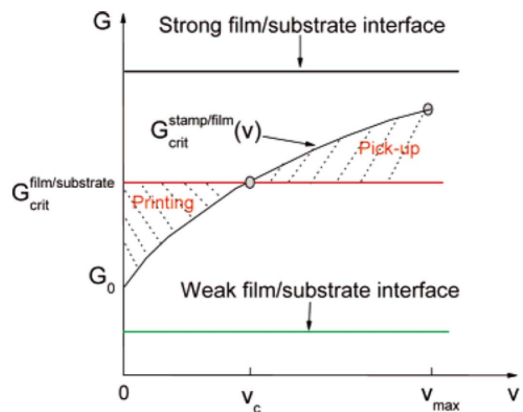


Fig. 8. Variation of crack driving force G with respect to peeling rate. Reprinted with permission from⁵²⁾. Copyright 2007, American Chemical Society.

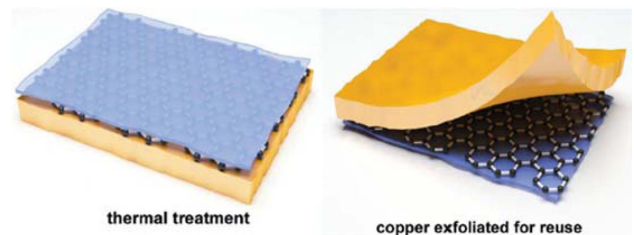


Fig. 9. Enhancement of graphene-polymer interfacial adhesion by thermal treatment. Reprinted with permission from⁵⁶⁾ Copyright 2019, Royal Society of Chemistry.

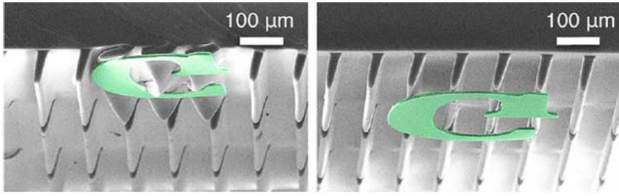


Fig. 10. Transfer-printing by geometric effect. Reprinted with permission from⁶⁰⁾. Copyright 2014, American Chemical Society.

lizard)의 발바닥을 모사한 미세 섬유 구조⁶²⁾나, 진딧물(aphid) 다리의 압력을 제어할 수 있는 구조⁶³⁾ 등 자연 모사 구조를 적극적으로 활용하였다는 특징이 있다.

3.1.4 하중 모드

전단 응력과 수직 응력의 비율도 계면 파괴 거동에 큰 영향을 미치며,^{64,65)} 이러한 특성을 접목한 전사 연구들이 다방면으로 보고되었다. 먼저, 수직 응력을 인가하여 나노박막을 스탬프로 전사하고, 박막을 목표기판으로 인쇄할 때 전단 응력을 함께 가해주어 스탬프로부터 박막을 쉽게 박리하는 전사-인쇄 방식이 개발되었다(Fig. 11).^{66,67)} Cheng 등⁶⁸⁾은 전단 응력을 통한 전사-인쇄 현상의 메커니즘을 전단 변형이 커지면 수직 방향의 힘이 감소하기 때문이라고 분석하였다. 한편, Jang 등⁶⁹⁾은 R2R 공정에서 스탬프 위에 코팅된 환원된 산화 그래핀 박막이 전단 응력과 수직 응력의 mixed mode 조건을 이용하면 목표기판으로 전사가 더 잘된다는 것을 보고하였으며, 이를 mode mixity에 따른 G 의 증가로 해석하였다. 이러한 하중 모드에 따른 파괴 거동은 본 논문의 후반부에서 다시 한번 살펴볼 예정이다.

3.1.5 모세관력

최근에는 물의 모세관력을 이용한 이차원 물질의 전사 방법이 개발되었다.⁷⁰⁾ 보다 자세하게는 물을 스탬프 표면에 응결시키고 나노박막에 스탬프를 부착하면, 응결된 물 방울이 균열 진전력을 향상시키는 일시적인 접착제 역할을 하여 나노박막을 성장기판으로부터 박리할 수 있는 원리이다. 이 후 시간이 지남에 따라 얇은 물 층이 기화되

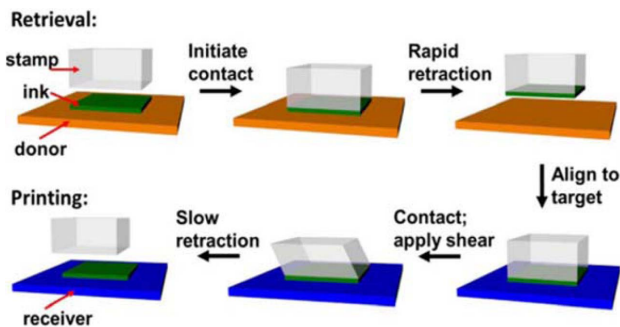


Fig. 11. Shear-enhanced transfer-printing. Reprinted with permission from.⁶⁶⁾ Copyright 2011, American Institute of Physics.

면 스탬프-나노박막 계면 접착력이 다시 감소하므로 최종적으로 목표기판으로 인쇄가 가능하다(Fig. 12).

3.1.6 기타 요인

앞서 언급한 요인들 외에도, 동시에 열과 압력을 가하거나,⁷¹⁾ 열과 압력 그리고 전기장을 가하여⁷²⁾ 목표기판과 나노박막 사이의 접촉 면적을 극대화 하여 접착제 층 없이 나노박막을 전사하는 방법이 보고되었다(Fig. 13). 또한 니켈 등의 금속 박막 증착 단계에서 발생하는 박막 층 내부 응력(internal stress)의 도움을 통해 나노박막을 전사하는 방법 등이 보고되고 있는 현황이다(Fig. 14).⁷³⁾

지금까지 박리 속도, 온도, 표면 구조, 하중 모드, 모세관력 등 다양한 효과를 이용하여 외부로부터 인가하는 균열 진전력 G 를 제어하는 전사 연구들을 소개하였다. 하지만, G 를 제어하는 방법에는 다음의 두 가지 해결 과제가 있다. 첫째, 금(Au) 박막과 같이 도너(donor) 기판과 접합력이 낮은 물질의 경우 쉽게 박리가 가능하지만 그래핀과 같은 이차원 물질의 경우 기판과 강한 물리적 결합(bonding)을 형성하고 있기 때문에, 접착제나 표면 처리 등의 도움 없이 대면적의 전사가 어렵다. 둘째, 성공적인

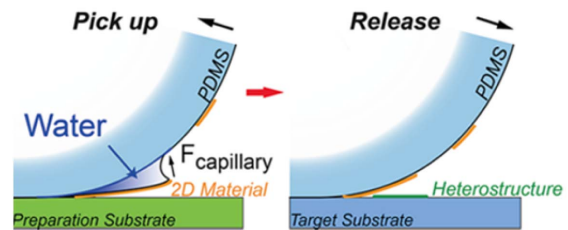


Fig. 12. Capillary-force-assisted transfer. Reprinted with permission from.⁷⁰⁾ Copyright 2017, American Chemical Society.

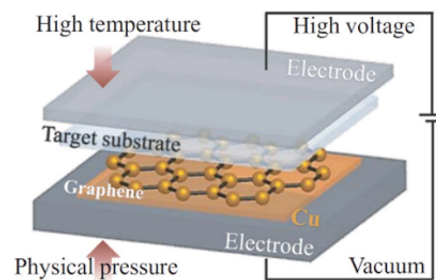


Fig. 13. Graphene transfer by applying physical pressure, high temperature, and high voltage. Reprinted with permission from.⁷²⁾ Copyright 2014, Wiley-VCH.

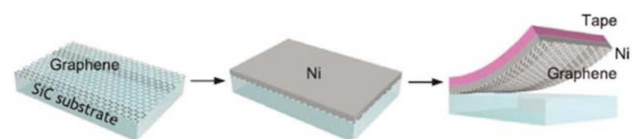


Fig. 14. Graphene transfer by stress induced with a Ni film. Reprinted with permission from.⁷³⁾ Copyright 2013, The American Association for the Advancement of Science.

전사를 위해 나노박막-성장기판 사이의 접합 에너지 G_C 를 초과하는 큰 균열 진전력 G 를 인가해야 한다는 것이다. 이러한 계면 파괴 원리는 박리 과정 중 나노박막에 균열이나 주름을 빈번하게 야기하며, 사전 균열(pre-crack) 없이 기계식 전사를 수행하기 어렵게 한다. 이와 같은 이유로 나노박막-성장기판 계면의 본질적인 접합 에너지 G_C 를 제어하는 방법도 함께 연구되어 왔다.

3.2 계면 접합 에너지 G_C 제어 방법

재료의 물성이라고 볼 수 있는 나노박막-성장기판 계면의 G_C 를 제어하는 것은 외부에서 인가하는 G 를 제어하는 것 보다 더 도전적인 방법이다. 따라서, G 를 제어하는 것과 같이 다양한 요인을 채택하기는 어렵지만, 지금까지의 연구들에서는 액체를 이용한 G_C 제어 및 전사 방법이 여러 문헌에서 보고되었다. Lee 등⁷⁴⁻⁷⁶⁾은 나노와이어(nanowire) 디바이스, 박막 기반 태양 전지 및 전자 장치 등을 Ni-SiO₂-Si wafer 기판 위에 제작하고, Ni-SiO₂ 계면을 물 안에서 손쉽게 박리하여 디바이스를 임의의 기판으로 전사하는 방법을 제시하였다(Fig. 15). 이 밖에도 고온의(50~90°C) 물 안에서 그래핀-구리 계면을 박리하여 목표기판으로 전사하는 방법,^{77,78)} 초기 균열을 인가한 후 물의 침투 효과를 이용해 이황화 몰리브덴(molybdenum disulfide, MoS₂) 박막을 성장기판으로부터 분리하는 방법,⁷⁹⁾ MoS₂를 성장시키기 전에 기판의 표면 개질(surface functionalization)을 통해 물의 침투를 유발하여 MoS₂를 박리하는 방법 등이 제시되었다.⁸⁰⁾ 최근에는 에탄올(ethanol)을 이용하여 접합 에너지 G_C 를 감소시킨 후 이차원 물질을 전사하는 연구 등도 보고되고 있다(Fig. 16).⁸¹⁾

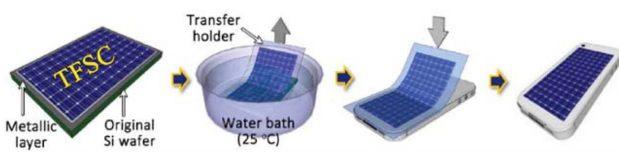


Fig. 15. Delamination of Ni-SiO₂ interface in water for transferring thin film electronics. Reprinted with permission from.⁷⁵⁾ Copyright 2012, Springer Nature.

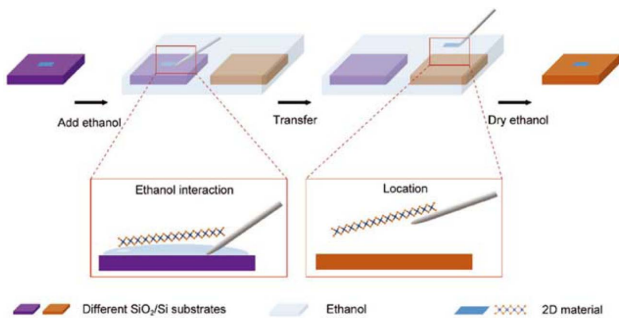


Fig. 16. Ethanol-assisted transfer of two-dimensional materials. Reprinted with permission from.⁸¹⁾ Copyright 2019, Wiley-VCH.

상기 언급한 액체를 이용한 전사 방법들은 성장기판과 나노박막 사이의 계면 접합 에너지 G_C 를 감소시켜 구조적 손상을 효과적으로 저감할 수 있으며 고품질의 박막을 얻을 수 있는 접근법이다. 이때 G_C 를 감소시키는 메커니즘으로 제시된 것은 두 가지 이다. 먼저, Lee 등⁸²⁾은 균열 선단에서 계면의 strained bond와 environmental species간의 화학 작용에 의해 접합력이 감소한다는 environment-assisted subcritical debonding 거동⁸³⁾에 초점을 맞추어 메커니즘을 해석하였다(Fig. 17). 또한 이를 검증하기 위해 이중의팔보 파괴 시험과 분자동역학 시뮬레이션(molecular dynamics simulation)을 통해 Ni-SiO₂ 계면의 접합력 변화를 보여 주었다. 반면, Zhang 등⁸⁴⁾은 나노박막과 성장기판의 표면 젖음 특성(surface wettability), 그리고 액체의 표면 장력이 계면 박리에 필요한 힘에 영향을 미칠 것이라는 것을 이론적으로 분석하여 G_C 제어 메커니즘을 제안하였다. 하지만, 앞서 언급한 바와 같이 나노박막의 접합 특성이 복잡하고, 균열 선단에서의 화학 반응을 직접적으로 관찰하는 것은 매우 어려운 일이다. 따라서, 액체의 G_C 제어 메커니즘을 보다 정확하게 규명하기 위해 위에서 언급한 두 이론을 종합적으로 고려한 심층적 연구가 필요하다고 사료된다.

비록 많은 연구가 성공적으로 수행되어 왔지만, 아직까지 액체를 이용한 정량적 계면 접합 에너지 제어 기술은 부족한 현황으로 이에 대한 추가적인 연구가 요구된다. 또한, 액체를 이용하여 G_C 를 제어하는 방법이 나노박막의 구조적 손상을 저감하는 것에 효과적이거나, 액체로 인한 나노박막의 화학적 도핑 또는 오염 문제가 있을 수 있다는 단점이 있다. 따라서, 실제 응용 분야에 액체를 이용한 전사 공정을 적용하는 것에는 보다 신중한 접근이 요구된다.

지금까지 인가된 균열 진전력 G 와 나노박막-성장기판의 계면 접합 에너지 G_C 의 경쟁이라는 지배 방정식을 통해 나노박막의 전사 연구를 살펴보았다. 기계식 전사 방법은 공정의 간단함과 광범위한 적용 가능성 덕분에 산업적 활용 가능성이 높은 방법이라고 판단된다. 이를 위

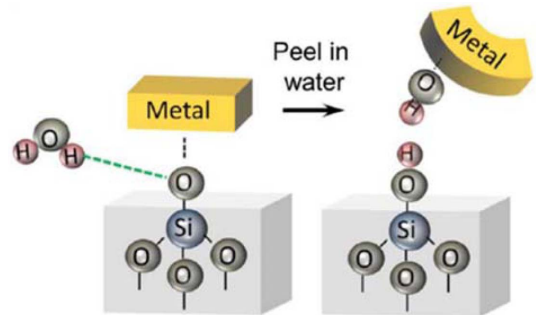


Fig. 17. Suggested mechanism for adhesion control in liquids: chemical reaction between a strained bond and environmental species at crack tip. Reprinted with permission from.⁸²⁾ Copyright 2013, Springer Nature.

해서는 대면적, 고품질 나노박막의 효과적 전사 공정 개발과 더불어, 생산 신뢰성을 확보하기 위한 전사된 나노박막의 품질 평가 기술이 수반되어야 할 것이다. 전사 공정에서 발생할 수 있는 구조적 결함 및 균열을 평가할 수 있는 방법으로는, 결함 가시화 방법,⁸⁵⁾ 테라헤르츠(terahertz)를 이용한 분석 방법,⁸⁶⁾ 전자기 유도 방법⁸⁷⁾ 등이 있다. 이러한 검출 방법들을 적절히 접목하고, 각 응용 분야에서 요구되는 나노박막의 품질 기준을 정확하게 설정하면, 최종적으로 기계식 전사 방법이 실제 산업에서 유용하게 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

3.3 균열 힘의 영향

마지막으로, 기계식 전사 방법의 기술 성숙도를 더욱 향상시키기 위한 방안으로 균열 힘의 영향을 고찰하고자 한다. 실제로, 나노박막의 계면 파괴 및 전사 거동을 정확하게 이해하기 위해서는 G 와 G_c 의 단순 비교만으로는 부족하다. 파괴 역학적 관점에서 균열의 진전 거동은 계면 및 재료의 파괴 에너지(fracture energy)뿐만 아니라, 균열 선단에서 균열 열림(opening)에 의한 모드 I 응력 집중 계수(mode I stress intensity factor, K_I), 면내 전단(in-plane shear)에 의한 모드 II 응력 집중 계수(mode II stress intensity factor, K_{II})의 비율에 영향을 받는다. 이러한 K_I 과 K_{II} 의 비율의 척도를 정량적으로 나타낼 수 있는 인자는 위상각(phase angle, ψ)으로 정의된다(Eq. (2)).

$$\psi = \tan^{-1} \frac{K_{II}}{K_I} \tag{2}$$

위상각은 균열의 궤적을 결정짓는 중요한 요소이고, 단일 재료의 경우 전단 응력에 의한 K_{II} 의 비율이 클수록 큰 균열 힘이 발생하게 된다. 또한, 이중 재료의 계면에서의 파괴 거동이 단일 재료보다 더 복잡하지만, 파괴역학 분야에서는 위상각 및 균열 힘이 계면 파괴 거동에 미치는 영향에 대한 연구가 꾸준히 보고되고 있다.^{64,65,88)} 반면, 나노박막의 기계식 전사 공정에서 균열 힘의 개념을 도입한 연구는 드문 현황이다. Yoon 등⁸⁹⁾은 다양한 접착제를 사용하여 그래핀의 전사 수율을 조사하고 이를 탄성 계수 및 두께 차이에 따른 균열 힘 변화로 해석하였다. 특히, 이러한 균열 힘에 대한 중요성은 다층 그래핀이나, 반데르발스 이중 적층 구조와 같이 구조적 복잡성이 커질수록 더욱 중요해 진다고 볼 수 있다. 이와 관련하여, Shim 등⁹⁰⁾은 접합 에너지와 굽힘 모멘트(bending moment)를 이용한 균열 힘 조절을 통해 다층 박막 구조에서의 균열의 궤적을 제어하는 연구를 발표하였고(Fig. 18), Kang 등⁹¹⁾은 다층 그래핀의 속도 의존성 전사를 실험적으로 보이고, 기존의 점탄성 접착제의 균열 진전력 변화 특성으로 설명이 어려운 부분을 균열 힘을 도입하여 전사 메커니즘을 제시하였다(Fig. 19).

앞서 수행된 연구들에서 나노박막의 전사 거동을 균열 힘을 도입하여 해석하였지만, 아직까지 균열 힘이 나노

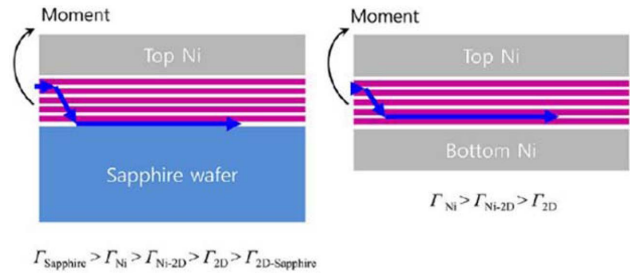


Fig. 18. Controlled crack propagation by considering bending moment and interfacial fracture energies. Reprinted with permission from.⁹⁰⁾ Copyright 2018, The American Association for the Advancement of Science.

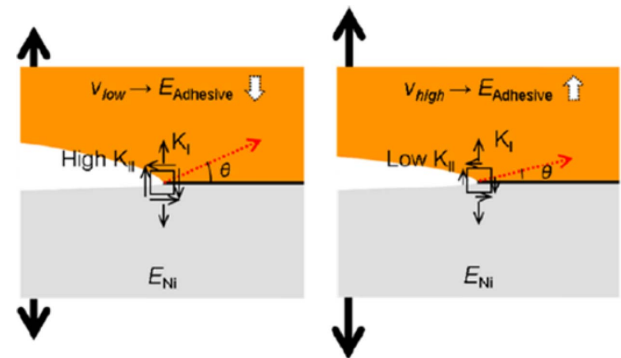


Fig. 19. Interpretation of rate-dependent mechanical transfer using deflection of crack. Reprinted with permission from.⁹¹⁾ Copyright 2019, American Chemical Society.

박막의 기계식 전사에 미치는 영향이 정확하게 밝혀 졌다고 판단하기는 어렵다. 나노박막의 계면 균열 진전 거동에는 인접한 물질의 탄성 계수 차이, 외부에서 인가되는 하중 모드, 시편의 기하학적 구조, 그리고 계면과 재료의 파괴 에너지 등이 종합적으로 작용하며, 이에 따라 나노박막의 전사 수율과 전사 품질에 큰 영향을 미칠 것으로 사료된다. 따라서, 추후 기계식 나노박막 전사의 기술 준비 수준(technology readiness level)을 높이기 위해 균열 힘이 나노박막 전사에 미치는 영향에 대한 정량적 연구가 필요하다.

4. 결 론

나노박막 기반 차세대 응용 제품이 상용화까지 도달하기 위해서는 (i) 고품질 기능성 박막의 제조 기술, (ii) 박막을 손상 없이 전사할 수 있는 기술, (iii) killer application의 세 가지 핵심 요건을 모두 갖추어야 한다. 본 논문에서는 두 번째 요건인 나노박막의 전사 기술을 박막의 박리 원리에 따라 습식 식각 전사, 전기화학적 박리, 기계식 전사 방법으로 분류하여 간략하게 살펴보았다. 그 중에서도, 광범위한 적용 가능성, 저비용의 간단한 공정성을 보유하고 있는 기계식 전사 방법을 계면 파괴 역학적 관점에서 다루어 보았다. 기계식 전사 기술의 원리는 G 와 G_c 의 경쟁으로 간주된다. 따라서 속도, 온도, 구조 등

을 포함한 다양한 요인으로 G 를 제어하는 방법, 액체를 이용해 G_C 를 제어하는 방법 두 가지 방식으로 연구가 진행되어 왔음을 확인하였다. 마지막으로, 균열 휨이 전사 결과에 미칠 수 있는 영향을 고찰하고 기계식 전사 방법의 기술 준비 수준을 향상시키기 위한 향후 연구 방향을 제안하였다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부와 KSRC 지원 사업인 미래반도체소자 원천기술개발사업(20010170), 2020년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 차세대 CPI 신뢰성 확보를 위한 구조 및 열설계 기술 개발사업(NRF-2020M3F3A2A01081589), 글로벌 박사 양성사업(2018H1A2A1060140)의 지원으로 수행되었습니다.

References

1. C. Lee, X. Wei, J. W. Kysar, and J. Hone, "Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene", *Science*, 321, 385 (2008).
2. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, and A. A. Firsov, "Two-Dimensional Gas of Massless Dirac Fermions in Graphene", *Nature*, 438, 197 (2005).
3. A. A. Balandin, S. Ghosh, W. Bao, I. Calizo, D. Teweldebrhan, F. Miao, and C. N. Lau, "Superior Thermal Conductivity of Single-Layer Graphene", *Nano Lett.*, 8(3), 902 (2008).
4. R. R. Nair, P. Blake, A. N. Grigorenko, K. S. Novoselov, T. J. Booth, T. Stauber, N. M. R. Peres, and A. K. Geim, "Fine Structure Constant Defines Visual Transparency of Graphene", *Science*, 320, 1308 (2008).
5. K. S. Kim, Y. Zhao, H. Jang, S. Y. Lee, M. J. Kim, K. S. Kim, J. H. Ahn, P. Kim, J. Y. Choi, and B. H. Hong, "Large-Scale Pattern Growth of Graphene Films for Stretchable Transparent Electrodes", *Nature*, 457, 706 (2009).
6. F. Bonaccorso, Z. Sun, T. Hasan, and A. C. Ferrari, "Graphene Photonics and Optoelectronics", *Nat. Photonics.*, 4, 611 (2010).
7. J. H. Ahn, H. Lee, and S. H. Choa, "Technology of Flexible Semiconductor/Memory Device", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 20(2), 1 (2013).
8. S. K. Lee, K. Rana, and J. H. Ahn, "Graphene Films for Flexible Organic and Energy Storage Devices", *J. Phys. Chem. Lett.*, 4, 831 (2013).
9. D. Son, J. Lee, S. Qiao, R. Ghaffari, J. Kim, J. E. Lee, C. Song, S. J. Kim, D. J. Lee, S. W. Jun, S. Yang, M. Park, J. Shin, K. Do, M. Lee, K. Kang, C. S. Hwang, N. Lu, T. Hyeon, and D.-H. Kim, "Multifunctional Wearable Devices for Diagnosis and Therapy of Movement Disorders", *Nat. Nanotech.*, 9, 397 (2014).
10. J. Kim, M. Lee, H. J. Shim, R. Ghaffari, H. R. Cho, D. Son, Y. H. Jung, M. Soh, C. Choi, S. Jung, K. Chu, D. Jeon, S. T. Lee, J. H. Kim, S. H. Choi, T. Hyeon, and D.-H. Kim, "Stretchable Silicon Nanoribbon Electronics for Skin Prosthesis", *Nat. Commun.*, 5, 5747 (2014).
11. Y. H. Ko, K. Choi, S. W. Kim, D. Y. Yu, J. Bang, and T. S. Kim, "Trends of Researches and Technologies of Electronic Packaging Using Graphene", *J. Microelectron. Packag. Soc.*, 23(2), 1 (2016).
12. H. Jang, Y. J. Park, X. Chen, T. Das, M. S. Kim, and J. H. Ahn, "Graphene-Based Flexible and Stretchable Electronics", *Adv. Mater.*, 28, 4184 (2016).
13. H. E. Lee, J. H. Shin, J. H. Park, S. K. Hong, S. H. Park, S. H. Lee, J. H. Lee, I. S. Kang, and K. J. Lee, "Micro Light Emitting Diodes for Display and Flexible Biomedical Applications", *Adv. Funct. Mater.*, 29, 1808075 (2019).
14. Y. Zhan, Z. Liu, S. Najmaei, P. M. Ajayan, and J. Lou, "Large-Area Vapor-Phase Growth and Characterization of MoS₂ Atomic Layers on a SiO₂ Substrate", *Small*, 8(7), 966 (2012).
15. Y. Nam, H. O. Kim, S. H. Cho, and S. H. K. Park, "Effect of Hydrogen Diffusion in an In-Ga-Zn-O Thin Film Transistor with an Aluminum Oxide Gate Insulator on Its Electrical Properties", *RCS Adv.*, 8, 5622 (2018).
16. B. Deng, Z. Liu, and H. Peng, "Toward Mass Production of CVD Graphene Films", *Adv. Mater.*, 31, 1800996 (2019).
17. B. D. Gates, Q. Xu, M. Stewart, D. Ryan, C. G. Willson, and G. M. Whitesides, "New Approaches to Nanofabrication: Molding, Printing, and Other Techniques", *Chem. Rev.*, 105, 1171 (2005).
18. M. Konagai, M. Sugimoto, and K. Takahashi, "High Efficiency GaAs Thin Film Solar Cells by Peeled Film Technology", *J. Cryst. Growth*, 45, 277 (1978).
19. J. Yoon, S. Jo, I. S. Chun, I. Jung, H. S. Kim, M. Meitl, E. Menard, X. Li, J. J. Coleman, U. Paik, and J. A. Rogers, "GaAs Photovoltaics and Optoelectronics Using Releasable Multilayer Epitaxial Assemblies", *Nature*, 465, 329 (2010).
20. C. W. Cheng, K. T. Shiu, N. Li, S. J. Han, L. Shi, and D. K. Sadana, "Epitaxial Lift-Off Process for Gallium Arsenide Substrate Reuse and Flexible Electronics", *Nat. Commun.*, 4, 1577 (2013).
21. N. K. Mahenderkar, Q. Chen, Y. C. Liu, A. R. Duchild, S. Hofheins, E. Chason, and J. A. Switzer, "Epitaxial Lift-Off of Electrodeposited Single-Crystal Gold Foils for Flexible Electronics", *Science*, 355, 1203 (2017).
22. X. Li, Y. Zhu, W. Cai, M. Borysiak, B. Han, D. Chen, R. D. Piner, L. Colombo and R. S. Ruoff, "Transfer of Large-Area Graphene Films for High-Performance Transparent Conductive Electrodes", *Nano Lett.*, 9(12), 4359 (2009).
23. K. K. Liu, W. Zhang, Y. H. Lee, Y. C. Lin, M. T. Chang, C. Y. Su, C. S. Chang, H. Li, Y. Shi, H. Zhang, C. S. Lai, and L. J. Li, "Growth of Large-Area and Highly Crystalline MoS₂ Thin Layers on Insulating Substrates", *Nano Lett.*, 12(3), 1538 (2012).
24. S. Fan, Q. A. Vu, M. D. Tran, S. Adhikari, and Y. H. Lee, "Transfer Assembly for Two-Dimensional van der Waals Heterostructures", *2D Mater.*, 7, 022005 (2020).
25. A. Pirkle, J. Chan, A. Venugopal, D. Hinojos, C. W. Magnuson, S. McDonnell, L. Colombo, E. M. Vogel, R. S. Ruoff, and R. M. Wallace, "The Effect of Chemical Residues on the Physical and Electrical Properties of Chemical Vapor Deposited Graphene Transferred to SiO₂", *Appl. Phys. Lett.*, 99, 122108 (2011).
26. H. H. Kim, B. Kang, J. W. Suk, N. Li, K. S. Kim, R. S. Ruoff, W. H. Lee, and K. Cho, "Clean Transfer of Wafer-Scale Graphene via Liquid Phase Removal of Polycyclic Aromatic

- Hydrocarbons”, *ACS Nano*, 9(5), 4726 (2015).
27. H. V. Ngoc, Y. Qian, S. K. Han, and D. J. Kang, “PMMA-Etching-Free Transfer of Wafer-Scale Chemical Vapor Deposition Two-Dimensional Atomic Crystal by a Water Soluble Polyvinyl Alcohol Polymer Method”, *Sci. Rep.*, 6, 33096 (2016).
 28. Z. Zhang, J. Du, D. Zhang, H. Sun, L. Yin, L. Ma, J. Chen, D. Ma, H. M. Cheng, and W. Ren, “Rosin-Enabled Ultraclean and Damage-Free Transfer of Graphene for Large-Area Flexible Organic Light-Emitting Diodes”, *Nat. Commun.*, 8, 14560 (2017).
 29. W. S. Leong, H. Wang, J. Yeo, F. J. Martin-Martinez, A. Zubair, P. C. Shen, Y. Mao, T. Palacio, M. J. Buehler, J. Y. Hong, and J. Kong, “Paraffin-Enabled Graphene Transfer”, *Nat. Commun.*, 10, 867 (2019).
 30. S. Bae, H. Kim, Y. Lee, X. Xu, J. S. Park, Y. Zheng, J. Balakrishnan, T. Lei, H. R. Kim, Y. I. Song, Y. J. Kim, K. S. Kim, B. Ozyilmaz, J. H. Ahn, B. H. Hong, and S. Iijima, “Roll-to-Roll Production of 30-Inch Graphene Films for Transparent Electrodes”, *Nat. Nanotech.*, 5, 574 (2010).
 31. B. Jang, C. H. Kim, S. T. Choi, K. S. Kim, K. S. Kim, H. J. Lee, S. Cho, J. H. Ahn, and J. H. Kim, “Damage Mitigation in Roll-to-Roll Transfer of CVD-Graphene to Flexible Substrates”, *2D Mater.*, 4, 024002 (2017).
 32. Y. Wang, Y. Zheng, X. Xu, E. Dubuisson, Q. Bao, J. Lu, and K. P. Loh, “Electrochemical Delamination of CVD-Grown Graphene Film: Toward the Recyclable Use of Copper Catalyst”, *ACS Nano*, 5(12), 9927 (2011).
 33. L. Gao, W. Ren, H. Xu, L. Jin, Z. Wang, T. Ma, L. P. Ma, Z. Zhang, Q. Fu, L. M. Peng, X. Bao, and H. M. Cheng, “Repeated Growth and Bubbling Transfer of Graphene with Millimetre-Size Single-Crystal Grains Using Platinum”, *Nat. Commun.*, 3, 699 (2012).
 34. Z. Tang, C. Neumann, A. Winter, and A. Turchanin, “Electrochemical Delamination Assisted Transfer of Molecular Nanosheets”, *Nanoscale*, 12, 8656, (2020).
 35. B. Deng, P. C. Hsu, G. Chen, B. N. Chandrashekar, L. Liao, Z. Ayitimuda, J. Wu, Y. Guo, L. Lin, Y. Zhou, M. Aisijiang, Q. Xie, Y. Cui, Z. Liu, and H. Peng, “Roll-to-Roll Encapsulation of Metal Nanowires between Graphene and Plastic Substrate for High-Performance Flexible Transparent Electrodes”, *Nano Lett.*, 15(6), 4206 (2015).
 36. Y. Gao, Z. Liu, D. M. Sun, L. Huang, L. P. Ma, L. C. Yin, T. Ma, Z. Zhang, X. L. Ma, L. M. Peng, H. M. Cheng, and W. Ren, “Large-Area Synthesis of High-Quality and Uniform Monolayer WS₂ on Reusable Au Foils”, *Nat. Commun.*, 6, 8569 (2015).
 37. M. M. Tavakoli, G. Azzellino, M. Hempel, A. Y. Lu, F. J. Martin-Martinez, J. Zhao, J. Yeo, T. Palacios, M. J. Buehler, and J. Kong, “Synergistic Roll-to-Roll Transfer and Doping of CVD-Graphene Using Parylene for Ambient-Stable and Ultra-Lightweight Photovoltaics”, *Adv. Funct. Mater.*, 31, 2001924 (2020).
 38. C. T. Cherian, F. Giustiniano, I. Martin-Fernandez, H. Andersen, J. Balakrishnan, and B. Ozyilmaz, “‘Bubble-Free’ Electrochemical Delamination of CVD Graphene Films”, *Small*, 11(2), 189 (2015).
 39. T. Yoon, W. C. Shin, T. Y. Kim, J. H. Mun, T. S. Kim, and B. J. Cho, “Direct Measurement of Adhesion Energy of Monolayer Graphene As-Grown on Copper and Its Application to Renewable Transfer Process”, *Nano Lett.*, 12(3), 1448 (2012).
 40. M. A. Meitl, Z. T. Zhu, V. Kumar, K. J. Lee, X. Feng, Y. Y. Huang, I. Adesida, R. G. Nuzzo, and J. A. Rogers, “Transfer Printing by Kinetic Control of Adhesion to an Elastometric Stamp”, *Nat. Mater.*, 5, 33 (2006).
 41. H. C. Ko, M. P. Stoykovich, J. Song, V. Malyarchuk, W. M. Choi, C. J. Yu, J. B. Geddes III, J. Xiao, S. Wang, Y. Huang, and J. A. Rogers, “A Hemispherical Electronic Eye Camera Based on Compressible Silicon Optoelectronics”, *Nature*, 454, 748 (2008).
 42. S. Kang, J. B. Pyo, and T. S. Kim, “Layer-by-Layer Assembly of Free-Standing Nanofilms by Controlled Rolling”, *Langmuir*, 34(20), 5831 (2018).
 43. A. L. Elias, N. Perea-Lopez, A. Castro-Beltran, A. Berkdemir, R. Lv, S. Feng, A. D. Long, T. Hayashi, Y. A. Kim, M. Endo, H. R. Gutierrez, N. R. Pradhan, L. Balicas, T. E. Mallouk, F. Lopez-Urias, H. Terrones, and M. Terrones, “Controlled Synthesis and Transfer of Large-Area WS₂ Sheets: From Single Layer to Few Layers”, *ACS Nano*, 7(6), 5235 (2013).
 44. K. Kang, K. H. Lee, Y. Han, H. Gao, S. Xie, D. A. Muller, and J. Park, “Layer-by-Layer Assembly of Two-Dimensional Materials into Wafer-Scale Heterostructures”, *Nature*, 550, 229 (2017).
 45. J. S. Bunch and M. L. Dunn, “Adhesion Mechanics of Graphene Membranes”, *Solid State Commun.*, 152, 1359 (2012).
 46. S. P. Koenig, N. G. Boddeti, M. L. Dunn, and S. Bunch, “Ultrastrong Adhesion of Graphene Membranes”, *Nat. Nanotech.*, 6, 543 (2011).
 47. A. Castellanos-Gomez, M. Buscema, R. Molenaar, V. Singh, L. Janssen, H. S. J. van der Zant, and G. A. Steele, “Deterministic Transfer of Two-Dimensional Materials by All-Dry Viscoelastic Stamping”, *2D Mater.*, 1, 011002 (2014).
 48. S. R. Na, J. W. Suk, L. Tao, D. Akinwande, R. S. Ruoff, R. Huang, and K. M. Liechti, “Selective Mechanical Transfer of Graphene from Seed Copper Foil Using Rate Effects”, *ACS Nano*, 9(2), 1325 (2015).
 49. S. R. Na, S. Rahimi, L. Tao, H. Chou, S. K. Ameri, D. Akinwande, and K. M. Liechti, “Clean Graphene Interfaces by Selective Dry Transfer for Large Area Silicon Integration”, *Nanoscale*, 8, 7523 (2016).
 50. H. Xin, Q. Zhao, D. Chen, and W. Li, “Roll-to-Roll Mechanical Peeling for Dry Transfer of Chemical Vapor Deposition Graphene” *J. Micro Nano-Manuf.*, 6(3), 031004 (2018).
 51. J. Seo, C. Kim, B. S. Ma, T. I. Lee, J. H. Bong, J. G. Oh, B. J. Cho, and T. S. Kim, “Direct Graphene Transfer and Its Application to Transfer Printing Using Mechanically Controlled, Large-Area Graphene/Copper Freestanding Layer”, *Adv. Funct. Mater.*, 28, 1707102 (2018).
 52. X. Feng, M. A. Meitl, A. M. Bowen, Y. Huang, R. G. Nuzzo, and J. A. Rogers, “Competing Fracture in Kinetically Controlled Transfer Printing”, *Langmuir*, 23(25), 12555 (2007).
 53. M. Deruelle, L. Leger, and M. Tirrell, “Adhesion at the Solid-Elastomer Interface: Influence of the Interfacial Chains”, *Macromolecules*, 28, 7419 (1995).
 54. R. Saeidpourazar, R. Li, Y. Li, M. D. Sangid, C. Lu, Y. Huang, J. A. Rogers, and P. M. Ferreira, “Laser-Driven Micro Transfer Placement of Prefabricated Microstructures”, *J. Microelectromech. Syst.*, 21(5), 1049 (2012).
 55. M. K. Choi, I. Park, D. C. Kim, E. Joh, O. K. Park, J. Kim,

- M. Kim, C. Choi, J. Yang, K. W. Cho, J. H. Hwang, J. M. Nam, T. Hyeon, J. H. Kim, and D.-H. Kim, "Thermally Controlled, Patterned Graphene Transfer Printing for Transparent and Wearable Electronic/Optoelectronic System", *Adv. Funct. Mater.*, 25, 7109 (2015).
56. R. Li, Q. Zhang, E. Zhao, J. Li, Q. Gu, and P. Gao, "Etching- and Intermediate-Free Graphene Dry Transfer onto Polymeric Thin Films with High Piezoresistive Gauge Factors", *J. Mater. Chem.*, 7, 13032 (2019).
57. T. H. Kim, A. Carlson, J. H. Ahn, S. M. Won, S. Wang, Y. Huang, and J. A. Rogers, "Kinetically Controlled, Adhesiveless Transfer Printing Using Microstructured Stamps", *Appl. Phys. Lett.*, 94(11), 113502 (2009).
58. S. Kim, J. Wu, A. Carlson, S. H. Jin, A. Kovalsky, P. Glass, Z. Liu, N. Ahmed, S. L. Elgan, W. Chen, P. M. Ferreira, M. Sitti, Y. Huang, and J. A. Rogers, "Microstructured Elastomeric Surfaces with Reversible Adhesion and Examples of Their Use in Deterministic Assembly by Transfer Printing", *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 107(40), 17095 (2010).
59. A. Carlson, S. Wang, P. Elvikis, P. M. Ferreira, Y. Huang, and J. A. Rogers, "Active, Programmable, Elastomeric Surfaces with Tunable Adhesion for Deterministic Assembly by Transfer Printing", *Adv. Funct. Mater.*, 22, 4476 (2012).
60. B. Yoo, S. Cho, S. Seo, and J. Lee, "Elastomeric Angled Microflaps with Reversible Adhesion for Transfer-Printing Semiconductor Membranes onto Dry Surfaces", *ACS Appl. Mater. Interfaces.*, 6(21), 19247 (2014).
61. C. Linghu, C. Wang, N. Cen, J. Wu, Z. Lai, and J. Song, "Rapidly Tunable and Highly Reversible Bio-Inspired Dry Adhesion for Transfer Printing in Air and a Vacuum", *Soft Matter*, 15, 30 (2019).
62. K. Autumm, A. Dittmore, D. Santos, M. Spenko, and M. Cutkosky, "Frictional Adhesion: a New Angle on Gecko Attachment", *J. Exp. Biol.*, 209, 3569 (2006).
63. A. D. Lees and J. Hardie, "The Organs of Adhesion in the Aphid *Megoura viciae*", *J. Exp. Biol.*, 136, 209 (1988).
64. A. G. Evans, B. J. Dalgleish, M. He, and J. W. Hutchinson, "On Crack Path Selection and the Interface Fracture Energy in Bimaterial Systems", *Acta Metall.*, 37(12), 3249 (1989).
65. A. G. Evans, M. Rühle, B. J. Dalgleish, and P. G. Charalambides, "The Fracture Energy of Bimaterial Interfaces", *Metall. Trans. A*, 21(9), 2419 (1990).
66. A. Carlson, H. J. Kim-Lee, J. Wu, P. Elvikis, H. Cheng, A. Kovalsky, S. Elgan, Q. Yu, P. M. Ferreira, Y. Huang, K. T. Turner, and J. A. Rogers, "Shear-Enhanced Adhesiveless Transfer Printing for Use in Deterministic Materials Assembly", *Appl. Phys. Lett.*, 98(26), 264104 (2011).
67. P. Sen, Y. Xiong, Q. Zhang, S. Park, W. You, H. Ade, M. W. Kudenov, and B. T. O'Connor, "Shear Enhanced Transfer Printing of Conducting Polymer Thin Films", *ACS Appl. Mater. Interfaces.*, 10(37), 31560 (2018).
68. H. Cheng, J. Wu, Q. Yu, H. J. Kim-Lee, A. Carlson, K. T. Turner, K. C. Hwang, Y. Huang, and J. A. Rogers, "An Analytical Model for Shear-Enhanced Adhesiveless Transfer Printing", *Mech. Res. Commun.*, 43, 46 (2012).
69. H. W. Jang and W. S. Kim, "Shear-Induced Dry Transfer of Reduced Graphene Oxide Thin Film via Roll-to-Roll Printing", *Appl. Phys. Lett.*, 108(9), 091601 (2016).
70. X. Ma, Q. Liu, D. Xu, Y. Zhu, S. Kim, Y. Cui, L. Zhong, and M. Liu, "Capillary-Force-Assisted Clean-Stamp Transfer of Two-Dimensional Materials", *Nano Lett.*, 17(11), 6961 (2017).
71. G. J. M. Fechine, I. Martin-Frenandez, G. Yiapanis, R. Bentini, E. S. Kulkarni, R. V. Bof de Oliveria, X. Hu, I. Yarovsky, A. H. Castro Neto, and B. Ozyilmaz, "Direct Dry Transfer of Chemical Vapor Deposition Graphene to Polymeric Substrates", *Carbon*, 83, 224 (2015).
72. W. Jung, D. Kim, M. Lee, S. Kim, J. H. Kim, and C. S. Han, "Ultraconformal Contact Transfer of Monolayer Graphene on Metal to Various Substrates", *Adv. Mater.*, 26, 6394 (2014).
73. J. Kim, H. Park, J. B. Hannon, S. W. Bedell, K. Fogel, D. K. Sadana, and C. Dimitrakopoulos, "Layer-Resolved Graphene Transfer via Engineered Strain Layers", *Science*, 342, 833 (2013).
74. C. H. Lee, D. R. Kim, and X. Zheng, "Fabrication of Nanowire Electronics on Nonconventional Substrates by Water-Assisted Transfer Printing", *Nano Lett.*, 11(8), 3435 (2011).
75. C. H. Lee, D. R. Kim, I. S. Cho, N. William, Q. Wang, and X. Zheng, "Peel-and-Stick: Fabricating Thin Film Solar Cell on Universal Substrates", *Sci. Rep.*, 2, 1000 (2012).
76. D. S. Wie, Y. Zhnag, M. K. Kim, B. Kim, S. Park, Y. J. Kim, P. P. Irazoqui, X. Zheng, B. Xu, and C. H. Lee, "Wafer-Recyclable, Environment-Friendly Transfer Printing for Large-Scale Thin-Film Nanoelectronics", *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 115(31), E9236 (2018).
77. P. Gupta, P. D. Dongare, S. Grover, S. Dubey, H. Mamgain, A. Bhattacharya, and M. M. Deshmukh, "A Facile Process for Soak-and-Peel Delamination of CVD Graphene from Substrates Using Water", *Sci. Rep.*, 4, 3882 (2014).
78. B. N. Chandrashekar, B. Deng, A. S. Smitha, Y. Chen, C. Tan, H. Zhang, H. Peng, and Z. Liu, "Roll-to-Roll Green Transfer of CVD Graphene onto Plastic for a Transparent and Flexible Triboelectric Nanogenerator", *Adv. Mater.*, 27, 5210 (2015).
79. A. Gurarlan, Y. Yu, L. Su, Y. Yu, F. Suarez, S. Yao, Y. Zhu, M. Ozturk, Y. Zhang, and L. Cao, "Surface-Energy-Assisted Perfect Transfer of Centimeter-Scale Monolayer and Few-Layer MoS₂ Films onto Arbitrary Substrates", *ACS Nano*, 8(11), 11522 (2014).
80. S. M. Shinde, T. Das, A. T. Hoang, B. K. Sharma, X. Chen, and J. H. Ahn, "Surface-Functionalization-Mediated Direct Transfer of Molybdenum Disulfide for Large-Area Flexible Devices", *Adv. Funct. Mater.*, 28, 1706231 (2018).
81. X. Yang, X. Li, Y. Deng, Y. Wang, G. Liu, C. Wei, H. Li, Z. Wu, Q. Zheng, Z. Chen, Q. Jiang, H. Lu, and J. Zhu, "Ethanol Assisted Transfer of Clean Assembly of 2D Building Blocks and Suspended Structures", *Adv. Funct. Mater.*, 29, 1902427 (2019).
82. C. H. Lee, J. H. Kim, C. Zou, I. S. Cho, J. M. Weisse, W. Nemeth, Q. Wang, A. C. T. van Duin, T. S. Kim, and X. Zheng, "Peel-and-Stick: Mechanism Study for Efficient Fabrication of Flexible/Transparent Thin Film Electronics", *Sci. Rep.*, 3, 2917 (2013).
83. E. P. Guyer and R. H. Dauskardt, "Fracture of Nanoporous Thin-Film Glasses", *Nat. Mater.*, 3, 53 (2004).
84. Y. Zhang, Q. Liu, and B. Xu, "Liquid-Assisted, Etching-Free, Mechanical Peeling of 2D Materials", *Extreme Mech. Lett.*, 16, 33 (2017).
85. T. Yoon, J. H. Kim, J. H. Choi, D. Y. Jung, I. J. Park, S. Y. Choi, N. S. Cho, J. I. Lee, Y. D. Kwon, S. Cho, and T. S. Kim, "Healing Graphene Defects Using Selective Electrochemical Deposition: Toward Flexible and Stretchable

- Devices”, ACS Nano, 10(1), 1539 (2016).
86. J. D. Buron, D. H. Petersen, P. Boggild, D. G. Cooke, M. Hilke, J. Sun, E. Whiteway, P. F. Nielsen, O. Hansen, A. Yurgens, and P. U. Jepsen, “Graphene Conductance Uniformity Mapping”, Nano Lett., 12(10), 5074 (2012).
87. T. Yoon, S. Kang, T. Y. Kang, and T. S. Kim, “Detection of Graphene Cracks by Electromagnetic Induction, Insensitive to Doping Level”, Comput. Model. Eng. Sci., 120(2), 351 (2019).
88. A. Kamer, K. Larson-Smith, L. S. C. Pingree, and R. H. Dauskardt, “Adhesion and Degradation of Hard Coatings on Poly (Methyl Methacrylate) Substrates”, Thin Solid Films, 519(6), 1907 (2011).
89. T. Yoon, W. S. Jo, and T. S. Kim, “High-Yield Etching-Free Transfer of Graphene: a Fracture Mechanics Approach”, J. Microelectron. Packag. Soc., 21(2), 59 (2014).
90. J. Shim, S. H. Bae, W. Kong, D. Lee, K. Qiao, D. Nezich, Y. J. Park, R. Zhao, S. Sundaram, X. Li, H. Yeon, C. Choi, H. Kum, R. Yue, G. Zhou, Y. Ou, K. Lee, J. Moodera, X. Zhao, J. H. Ahn, C. Hinkle, A. Ougazzaden, and J. Kim, “Controlled Crack Propagation for Atomic Precision Handling of Wafer-Scale Two-Dimensional Materials”, Science, 362, 665 (2018).
91. S. Kang, T. Yoon, S. Kim, and T. S. Kim, “Role of Crack Deflection on Rate Dependent Mechanical Transfer of Multilayer Graphene and Its Application to Transparent Electrodes”, ACS Appl. Nano Mater., 2(4), 1980 (2019).



- 강수민
 - 한국과학기술원 기계공학과
 - 박막의 파괴 거동 및 전사
 - suminkang@kaist.ac.kr
-



- 김택수
 - 한국과학기술원 기계공학과
 - 박막의 기계적 특성 및 신뢰성
 - tskim1@kaist.ac.kr
-