

## 전사 방법에 따른 그래핀의 표면 에너지 변화

윤민아<sup>1,2</sup> · 김찬<sup>1,2</sup> · 원세정<sup>3</sup> · 정현준<sup>3</sup> · 김재현<sup>1,2</sup> · 김광섭<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>과학기술연합대학원대학교 나노메카트로닉스학과, <sup>2</sup>한국기계연구원 나노융합기계연구본부,  
<sup>3</sup>과동에너지극한제어연구단

### Surface Energy of Graphene Transferred by Wet and Dry Transfer Methods

Min-Ah Yoon<sup>1,2</sup>, Chan Kim<sup>1,2</sup>, Sejeong Won<sup>3</sup>, Hyun-June Jung<sup>3</sup>,  
Jae-Hyun Kim<sup>1,2</sup> and Kwang-Seop Kim<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>Department of Nano-Mechatronics, University of Science and Technology (UST)

<sup>2</sup>Nano-Convergence Mechanical Systems Research Division, Korea Institute of Machinery and Materials (KIMM)

<sup>3</sup>Center for Advanced Meta-Materials (CAMM)

(Received September 29, 2018; Revised December 28, 2018; Accepted January 2, 2019)

**Abstract** – Graphene is a fascinating material for fabricating flexible and transparent devices owing to its thickness and mechanical properties. To utilize graphene as a core material for devices, the transfer process of graphene is an inevitable step. The transfer process can be classified into wet and dry methods depending on the surrounding environment. The adhesion between graphene and a target substrate determines the success or failure of the transfer process. As the surface energy of graphene is an important parameter that provides adhesion, it is useful to estimate the surface energy to understand the mechanisms of the transfer process. However, the exact surface energy of graphene is still disputed because the wetting transparency of graphene depends on the polarity of the liquid and target substrate. Previously reported results use graphene transferred by the wet method. However, there are few reports on the surface energy of graphene transferred by the dry method. In this study, the surface energy of graphene transferred by the wet and dry methods is estimated. Wetting transparency occurs for certain combinations of liquids and substrates. For graphene on a polar substrate, the surface energy decreases by 25 and 35% for the wet and dry transfer methods, respectively. However, the surface energy of graphene on dispersive substrates decreases by ~10% regardless of the transfer method. In conclusion, the surface energy of graphene is 36~38 mJ/m<sup>2</sup>, and differs depending on the transfer method and polarity of the substrate.

**Keywords** – contact angles (접촉각), surface energy (표면 에너지), graphene (그래핀), wet transfer (습식 전사), dry transfer (건식 전사)

## 1. 서 론

투명하고 유연한 미래 전자 기기에 대한 연구가 활발히 진행되고 있으며, 이러한 전자기기의 구현이 가능하

도록 하는 핵심소재로 두께가 매우 얇아 유연하고 투명한 특성을 갖고 있는 2차원 물질(Graphene, MoS<sub>2</sub>, h-BN, WSe<sub>2</sub>, MoTe<sub>2</sub> 등)이 적용되고 있다[1]. 2차원 물질 중 그래핀은 뛰어난 기계적 특성으로 인해 미래 전자 기기에 응용하기 쉬워 많은 관심을 받아 왔다[2]. 그래핀을 전자 기기의 핵심 소재로 사용하기 위해서 대면적 제작이 가능한 화학기상증착(Cheical Vapor Deposition, CVD)법으로 합성된 그래핀을 유연하고 투명한 기판으

<sup>†</sup>Corresponding author: [kskim@kimm.re.kr](mailto:kskim@kimm.re.kr)  
Tel: +82-42-868-7770, Fax: +82-42-868-7884  
<http://orcid.org/0000-0003-4939-1973>

© 2019, Korean Tribology Society

로 옮겨 붙이는 전사 공정이 필요하다.

전사 공정은 크게 두 가지로 나눌 수 있는데 물을 매개로 하는 습식 전사 방법과 반 데르 발스(van der Waals) 상호작용을 이용하여 원하는 기판으로 옮겨 붙이는 건식 전사 방법이 있다[3].

그래핀을 원하는 기판에 효과적으로 전사하기 위해 습식 전사 방법에서는 물에 떠 있는 그래핀을 주름 없이 잘 건져내는 것이 중요하며, 건식 전사 방법에서는 기판과 그래핀 사이의 점착력이 그래핀과 그래핀을 지지하고 있는 캐리어 필름(Carrier Film, CF) 사이의 점착력보다 크게 유지하는 것이 중요하다. 따라서 건식 전사 방법으로 그래핀을 잘 전사하기 위해서는 기판이나 캐리어 필름 위에 있는 그래핀의 점착 특성이 중요하다. 점착 특성은 크게 점착력 또는 표면 에너지 등으로 나타낼 수 있으며, 그래핀의 젖음 특성(접촉각 등)을 통해 그래핀의 표면에너지를 계산할 수 있다.

최근 그래핀의 젖음 특성에 대한 연구가 활발히 진행됨에 따라 습식 전사된 그래핀의 젖음 투과성(Wetting transparency)에 대한 다양한 의견이 개진되고 있다[4-9]. 젖음 투과성 현상은 그래핀이 매우 얇기 때문에 나타나는 현상으로, 그래핀이 코팅되기 전의 기판의 접촉각과 그래핀이 코팅된 후 그래핀/기판의 접촉각이 유사한 현상을 말한다[5]. Shih 등[7]은 그래핀은 반투명 물질이기 때문에, 그래핀이 기판 위에 전사된 경우 물과 기판 사이에서 작용하는 반 데르 발스 상호작용이 30% 정도만 그래핀을 투과한다고 보고하였다. Du 등[9]은 극성 용액인 물과 무극성 용액인 디요오드화메탄 용액을 사용하여 접촉각을 측정하였고 그래핀의 젖음 투과성은 용액과 기판의 극성에 의존적이라고 보고하였다. 이와 같이 습식 전사된 그래핀의 젖음 특성에 대해서 많은 연구가 수행되었으나[4-9], 그래핀의 젖음 투과성에 대해서 아직 일치된 결론이 도출되지 않은 상황이다. 또한 건식 전사된 그래핀의 젖음 특성에 대한 연구가 부족한 상황이며, 최근에서야 다양한 기판에 각각 다른 전사 방법으로 전사된 그래핀의 젖음 특성에 대한 연구가 보고된 바가 있다[10, 11].

본 연구에서는 전사 방법에 따른 그래핀의 표면 특성을 알아보기 위해 습식과 건식 전사 방법으로 다양한 기판에 그래핀을 전사한 후, 그래핀의 접촉각을 측정하고, 이를 이용하여 표면에너지를 계산하였다. 이를 통해 각 전사 방법 및 기판이 전사된 그래핀의 표면에너지에 미치는 영향에 대해 조사하였다.

## 2. 실험 방법

### 2-1. 그래핀 샘플 제작

#### 2-1-1. 습식 전사

화학기상증착방법을 통해 구리 포일에 합성된 그래핀의 한쪽 면에 폴리메타크릴산메틸(poly(methyl methacrylate), PMMA)를 그래핀의 한 쪽 면에 스핀 코팅한다. 과황산암모늄 수용액(ammonium persulfate, APS)에 담귀 구리 포일을 녹여 없앤 뒤, 증류수(Deionized water, DI water)에 담귀 그래핀 표면에 묻은 과황산암모늄 수용액을 세척한다. 타겟 기판으로 PMMA/그래핀 샘플을 건져 건조시킨 후 아세톤에 담귀 그래핀 표면에 있는 PMMA를 제거한다[11].

#### 2-1-2. 건식 전사

화학기상증착방법을 통해 합성된 그래핀을 라미네이터(laminator)를 이용하여 캐리어 필름에 붙인다. 그 후, 과황산암모늄 수용액에 넣어 구리를 에칭한 뒤 증류수에 행군다. 캐리어 필름/그래핀 샘플을 데시케이터에서 건조시킨다. 라미네이터를 이용하여 건조된 캐리어 필름/그래핀 샘플을 원하는 기판에 붙였다가 캐리어 필름을 떼어내면 기판에 그래핀이 전사된다[11].

### 2-2. 접촉각 측정

접촉각 측정 장비(DSA 100, Kruss, German)를 이용하여 실리콘 웨이퍼( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) 및 primer-polyethylene terephthalate (p-PET), hard coated polyethylene terephthalate (h-PET) 기판의 접촉각과 습식과 건식 전사 방법으로 각 기판에 전사된 그래핀의 접촉각을 측정하였다. 접촉각 측정에 사용된 용액은 물(DI water) 그리고 디요오드화메탄(Diiodomethane), 폼아마이드(Formamide)이다. 물은 강한 극성(Polar) 용액이고, 디요오드화메탄은 무극성(Dispersive) 용액이다. 폼아마이드는 극성과 무극성을 모두 띄는 용액으로 각 용액에 대한 표면장력은 Table 1에서 보여준다. 각 샘플의 표면에 3  $\mu\text{L}$ 를 떨어뜨려 접촉각을 측정하였다.

측정 시, 샘플 내에서 서로 다른 부분에 3회 이상 용액을 떨어뜨려 접촉각을 측정하였다. 접촉각 측정은 습식 전사 방법으로 기판에 전사된 그래핀의 경우, PMMA 잔여물을 제거한 뒤로부터 5시간 후 그리고 건식 전사 방법으로 기판에 전사된 그래핀의 경우, 기판에 그래핀을 전사한 뒤로부터 5시간 이후에 접촉각을 측정하였다.

2-3. 표면 에너지 계산

Young-Dupre Eq. (1)과 Owen-Wendt 이론 (2)을 이용하여 식 (3)을 유도할 수 있으며, 이로부터 각 샘플의 표면에너지  $\gamma_{SL}$ 를 계산할 수 있다[9].

$$\gamma_{LV}(1 + \cos\theta) = \gamma_{SL} \tag{1}$$

$$\gamma_{SL} = 2\sqrt{\gamma_S^d \gamma_L^d} + 2\sqrt{\gamma_S^p \gamma_L^p} \tag{2}$$

$$\gamma_{LV}(1 + \cos\theta) = 2\sqrt{\gamma_S^d \gamma_L^d} + 2\sqrt{\gamma_S^p \gamma_L^p} \tag{3}$$

$\gamma_{LV}$ 는 사용한 테스트 용액의 표면 장력(surface tension or liquid-vapor surface energy)이며,  $\gamma_S^d$ ,  $\gamma_L^d$ 은 각각 샘플과 용액의 표면에너지 중 무극성 에너지(dispersive energy term)를 나타내며,  $\gamma_S^p$ ,  $\gamma_L^p$ 은 각각 샘플과 용액의 표면에너지 중 극성 에너지(polar energy term)를 나타낸다. 각 용액의 무극성 에너지( $\gamma_L^d$ )와 극성에너지( $\gamma_L^p$ ), 그래핀이 전사된 기판 샘플에서 측정된 각 용액의 접촉각( $\theta$ )을 식 (3)에 대입하여 그래핀/기판 샘플의 무극성에너지( $\gamma_S^d$ )와 극성에너지( $\gamma_S^p$ )를 계산할 수 있다. 각 샘플의 표면에너지는 무극성 에너지와 극성에너지의 합이다.

3. 결과 및 고찰

3-1. 전사 방법에 따른 접촉각의 변화

본 연구에서 사용한 테스트 용액 중, 물은 극성 용액이고, 디요오드화메탄은 무극성 용액이며, 포름아미드는 극성과 무극성을 모두 띠는 용액이다. 기판의 경우, p-PET는 무극성 기판, SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET는 극성 기판으로 구분된다.

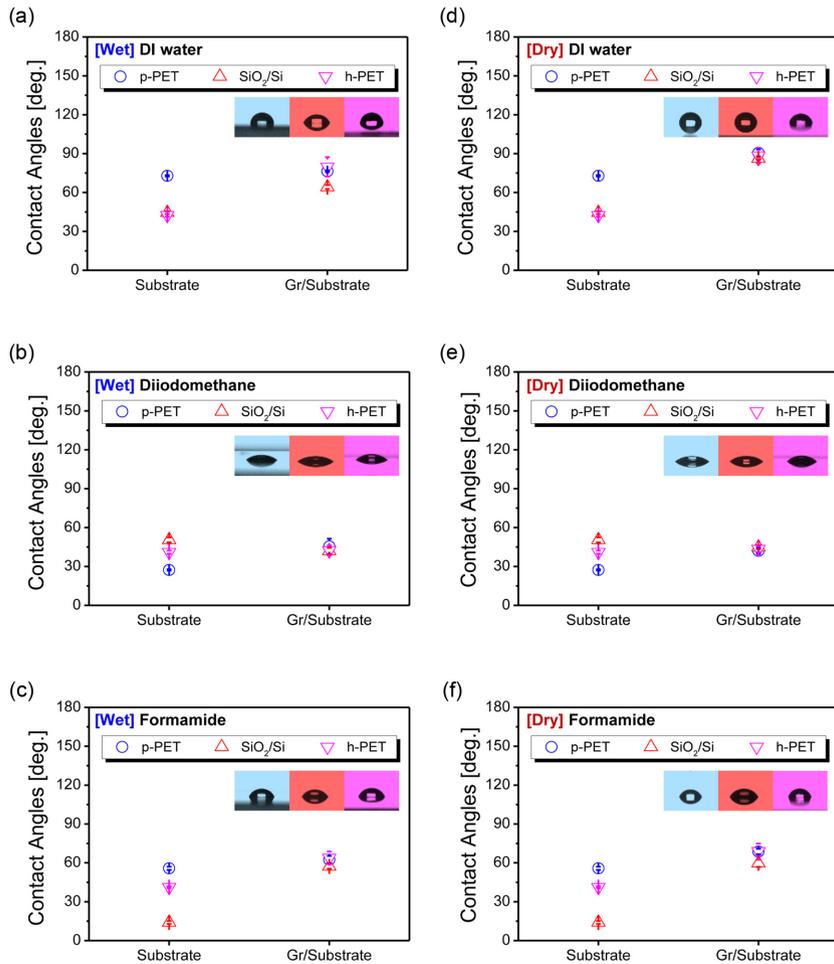
Fig. 1은 그래핀이 없는 순수한 기판(substrate)과 그래핀이 전사된 그래핀/기판(Gr/substrate)에서 측정된 접촉각 결과를 보여준다. Fig. 1(a-c)는 습식 전사된 그래핀/기판의 경우이다. 극성 용매인 물의 접촉각(Fig. 1(a))은 무극성 기판인 p-PET 위에서는 그래핀의 전사 전, 후에 유사하였다. 하지만 극성 기판인 SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET

기판의 경우, 그래핀을 전사하면 물 접촉각이 크게 증가하였다. 이와는 반대로 무극성 용매인 디요오드화메탄의 접촉각의 경우(Fig. 1(b)), 극성 기판 SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET에 그래핀을 전사하면 접촉각이 약간 감소하거나 유사하게 유지되지만, 무극성 기판 p-PET에 그래핀을 전사할 경우, 접촉각이 크게 증가하였다. 즉, 무극성 기판에 대한 극성 용액의 접촉각과 극성 기판에 대한 무극성 용액의 접촉각은 그래핀 있든 없든 유사한 값을 보이지만, 극성 기판에 대한 극성 용액의 접촉각과 무극성 기판에 대한 무극성 용액의 접촉각은 그래핀을 습식 전사한 이후에 모두 증가하였다. 이는 습식 전사 방법으로 전사된 그래핀에 대한 기존 연구 결과와 유사한 결과이며[12], 이러한 변화의 원인은 그래핀의 무극성 특성 때문이다. 즉, 극성 기판에 극성 용액을 떨어뜨리면 기판과 용액 사이에 강한 극성 상호작용이 존재하게 되는데, 그 사이에 무극성 특성의 그래핀이 들어가게 되면 이러한 강한 극성 상호작용을 그래핀이 감소시키기 때문에 그래핀이 없는 경우보다 그래핀이 있을 때 접촉각이 증가하게 된다. 그래핀 1장은 기판의 극성 특성의 대략 80%를 차단한다고 알려져 있다[12]. 이와는 다르게 p-PET 같은 무극성 기판에 대한 극성 용액인 물의 접촉각, 또는 SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET와 같은 극성 기판에 대한 무극성 용액인 디요오드화메탄의 접촉각은 그래핀이 전사된 후에도 접촉각이 거의 유사하게 측정되어 기존 연구에서 보고한 젖음 투과성 특성이 관찰되는 것처럼 보인다[4, 5]. 그 이유는 그래핀이 기판과 용액 사이에 놓이게 되면 기판과 용액 사이의 극성 상호작용은 감소시키지만, 그래핀과 용액 사이의 무극성 상호작용은 증가하여, 두 영향이 서로 상쇄되기 때문에 그래핀이 전사된 후에도 접촉각의 변화가 거의 없는 소위 젖음 투과성이 나타나는 것처럼 보이는 것이다.

Fig. 1(c)는 극성과 무극성을 모두 띠는 포름아미드 용액의 접촉각 변화를 보여준다. 이 경우, 기판의 극성 정도와 상관없이 모든 기판에서 그래핀을 전사하면 접촉각이 증가하는 것으로 나타났다. 특히 극성 기판인 SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET의 경우, 그래핀을 전사하면 기판과 포름아미드 사이의 강한 극성 상호작용이 크게 감소하여

Table 1. Surface tension of the deionized water (W), diiodomethane (DM), and formamide (F)

Liquids	$\gamma^{Dispersive}$ [mN/m]	$\gamma^{Polar}$ [mN/m]	$\gamma^{Total}$ [mN/m]
DI Water	18.7	53.6	72.8
Formamide	58.2	39.5	18.7
Diiodomethane	49.5	1.3	50.8



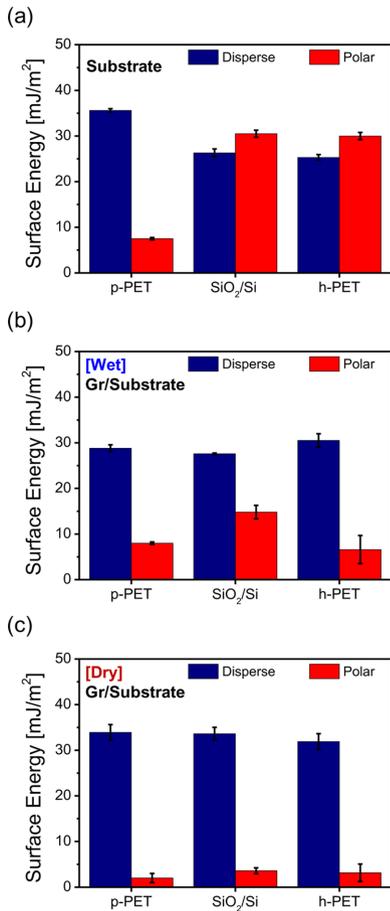
**Fig. 1.** Contact angles of (a) deionized water, (b) diiodomethane, and (c) formamide on wet transferred graphene on various substrates and contact angles of (d) deionized water, (e) diiodomethane, and (f) formamide on dry transferred graphene on various substrates. The images inserted in the graph is the contact angles of the graphene on substrates. The blue, red, pink color means the graphene is on the p-PET, SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET substrate, respectively.

접촉각이 크게 증가함을 알 수 있다. 즉, 기존 연구에서 언급한 그래핀의 젖음 투과성이라는 것은 몇몇 특수한 용액과 기판 조합에서만 나타나는 것이며, 용액과 기판의 극성 정도에 따라 크게 달라질 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 1(d)~(f)는 건식 전사된 그래핀/기판에 대한 접촉각 측정 결과를 보여준다. 건식 전사된 그래핀/기판의 경우, 기판에 상관없이 거의 일정한 접촉각이 측정되었다. 즉, 물의 경우는 90°, 디요오드화메탄의 경우는 45°, 포름아마이드의 경우는 65° 정도로 유사하게 측정되었다. 또한 습식 전사된 그래핀/기판과는 다르게, 그래핀

의 젖음 투과성이라는 것이 극성 기판인 SiO<sub>2</sub>/Si 위에 무극성 용액인 디요오드화메탄을 떨어뜨렸을 때만 관찰되며 그 외의 경우에는 나타나지 않았다.

이러한 결과는 전사 방법에 따른 그래핀과 기판 사이의 밀착성의 차이 때문에 발생한 것으로 판단된다. 즉, 습식 전사 방법의 경우, 물 위에 떠 있는 그래핀을 기판으로 건져 올리면, 건조 중에 그래핀과 기판 사이의 물이 마르면서 그래핀이 기판에 잘 밀착될 수 있다. 하지만 건식 전사 방법의 경우, 캐리어 필름에 있는 그래핀을 반 데르 발스 힘으로 기판에 전사하게 되는데, 이때 그래핀이 가지고 있는 주름과 구겨진 부분으로 인해



**Fig. 2.** Surface energies of p-PET, SiO<sub>2</sub>/Si, and h-PET substrates (a), wet-transferred graphene on the substrates (b), and dry-transferred graphene on the substrates.

그래핀이 기판에 충분히 밀착될 수 없다. 따라서 건식 전사된 그래핀/기판에 대한 접촉각은 기판의 영향이 거의 배제된 결과로 판단되며, 이로 인해 기판에 상관없이 일정한 접촉각이 측정된 것으로 판단된다.

### 3-2. 전사 방법에 따른 표면에너지의 변화

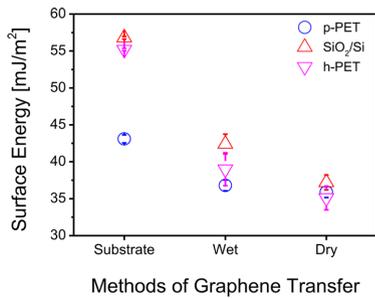
Fig. 2는 Fig. 1의 접촉각 측정 결과를 이용하여 계산된 표면에너지를 보여준다. p-PET 기판은 전체 표면에너지 43 mJ/m<sup>2</sup> 중 무극성 에너지가 35 mJ/m<sup>2</sup>, 극성 에너지가 8 mJ/m<sup>2</sup>로 무극성 기판임을 알 수 있다. SiO<sub>2</sub>/Si와 h-PET는 무극성 에너지가 각각 26, 25 mJ/m<sup>2</sup>이고, 극성 에너지가 각각 31, 30 mJ/m<sup>2</sup>로서, 극성 에너지가 더 강한 기판임을 알 수 있다. SiO<sub>2</sub>/Si와 h-PET의 전체

표면에너지는 각각 57, 55 mJ/m<sup>2</sup>로서 p-PET보다 상대적으로 큰 표면에너지를 갖고 있다(Fig. 2(a)).

Fig. 2(b)는 각 기판에 습식 전사 방법으로 그래핀을 전사한 경우의 표면에너지 변화를 보여준다. 무극성 기판인 p-PET에 그래핀을 전사하면 표면에너지 중 무극성 에너지는 20% 감소한 반면, 극성 에너지는 거의 변화가 없었다. 하지만, 극성 기판인 SiO<sub>2</sub>/Si, h-PET에 그래핀을 전사하면 무극성 에너지는 거의 유사하거나 오히려 약간 증가한 반면, 극성 에너지는 50~78% 감소하였다. h-PET 기판에 전사된 그래핀의 표면 에너지 산포가 크게 나타나는데 이는 h-PET 기판은 극성 기판으로 물과 친화력이 좋은 기판이기 때문이다. 그래핀의 전사 공정 중 그래핀을 물에서 기판으로 떠올리는 과정에서 그래핀과 h-PET 기판보다 물 분자와 h-PET 기판 사이의 상호작용이 더 강해 그래핀과 h-PET 기판 사이에 물 분자가 갇히기(trap) 때문이다. 이로 인해 h-PET 기판에 전사된 그래핀의 접촉각 중 극성 용액인 물과 극성과 무극성을 모두 띄는 포름아미드의 접촉각 편차가 커지고, 표면에너지의 편차가 커진다고 판단된다[14]. 즉, 무극성 특성의 그래핀이 무극성 기판에 전사되면, 무극성 에너지가 다소 감소하여 전체 표면에너지가 다소 감소함을 알 수 있다. 특히, 무극성 특성의 그래핀이 강한 극성을 띄는 극성 기판에 전사되면, 기판의 극성 에너지를 50~78% 감소시켜 전체 표면에너지가 크게 감소될 수 있다.

Fig. 2(c)는 건식 방법으로 그래핀을 전사한 경우의 표면에너지 변화를 보여준다. 앞서 언급한 습식 전사된 그래핀의 표면에너지 변화와는 다르게 그래핀을 건식 전사한 경우, 기판에 상관없이 거의 일정한 무극성 에너지와 극성 에너지를 갖게 됨을 알 수 있다. 즉, 기판에 상관없이 무극성 에너지는 32~34 mJ/m<sup>2</sup>로 유사해지고, 극성에너지는 극성 기판의 경우 최대 83%까지 감소하여 4 mJ/m<sup>2</sup> 이하로 유사한 값을 갖게 되었다. 이러한 결과의 원인은 앞서 언급한 바와 같이 건식 전사된 그래핀의 경우 기판에 잘 밀착되지 않아 기판의 영향이 매우 미미하기 때문인 것으로 판단된다. 즉, 그래핀 1장의 표면에너지가 측정된 것으로 판단되며, 전체 표면에너지 값은 35~37 mJ/m<sup>2</sup>로 기존 연구의 결과와 매우 유사함을 알 수 있다[15].

Fig. 3는 기판과 전사 방법에 따른 그래핀의 전체 표면 에너지를 비교한 그래프이다. 습식 전사된 그래핀/기판의 표면 에너지는 원래 기판의 표면 에너지보다 대략 10~25% 감소함을 알 수 있다. 건식 전사된 그래핀/기판



**Fig. 3. Surface energy of substrate and graphene transferred substrate by wet and dry transfer methods.**

의 표면 에너지는 10~35% 감소하며, 기판에 관계없이 표면 에너지 값이 35~37 mJ/m<sup>2</sup>로 수렴하였다. 따라서, 그래핀을 기판에 전사하게 되면 표면에너지가 감소하며, 특히 극성 기판의 경우 그래핀의 무극성 특성 때문에 표면에너지가 크게 감소함을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

전사 방법에 따른 그래핀/기판의 표면에너지 변화를 조사하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 기존에 보고된 그래핀의 젖음 투과성이라는 것은 몇몇 특수한 용액과 기판 조합에서만 나타나는 것으로, 용액과 기판의 극성 정도에 따라 크게 달라질 수 있다.

(2) 무극성 특성을 갖는 그래핀이 극성 기판에 전사될 경우, 기판의 극성 에너지가 50~83% 감소하여 전체 표면에너지가 습식 전사의 경우 25%, 건식 전사의 경우 35%까지 감소하였다. 그래핀이 무극성 기판에 전사될 경우, 습식 전사의 경우 무극성 에너지가 크게 감소하였고, 건식 전사의 경우 무극성 에너지가 감소하지만 극성 에너지가 크게 감소하여 전사 방법에 관계 없이 전체 표면에너지가 대략 10% 감소하였다.

(3) 전사 방법에 따라 그래핀/기판의 표면에너지가 달라질 수 있으며, 건식 전사 방법과 같이 그래핀과 기판의 밀착성이 좋지 않을 경우, 기판에 상관없이 그래핀/기판의 표면에너지가 35~37 mJ/m<sup>2</sup>로 일정한 값을 가질 수 있다.

#### Acknowledgements

본 연구는 한국기계연구원(KIMM)의 차세대 유연 투명 디스플레이 나노기반 제조 핵심 기술 개발(NK211C)

과 과동에너지 극한제어 연구단(CAMM)의 극한물성시스템 기계 융합기술(NM9050)의 지원을 받아 수행되었습니다.

#### References

- [1] Choi, K., Lee, Y. T., Im, S., "Two-dimensional van der Waals nanosheet devices for future electronics and photonics", *Nano Today*, Vol. 11, No. 5, pp. 626-643, 2016.
- [2] Das, T., Sharma, B. K., Katiyar, A. K., Ahn, J. H., "Graphene-based flexible and wearable electronics", *J. Semicond.*, Vol. 39, No. 1, pp.011007, 2018.
- [3] Kim, S. J., Choi, T., Lee, B., Lee, S., Choi, K., Park, J. B., Yoo, J. M., Choi, Y. S., Ryu, J., Kim, P., Hone, J., Hong, B. H., "Ultraclean patterned transfer of single-layer graphene by recyclable pressure sensitive adhesive films", *Nano Lett.*, Vol. 15, pp. 3236-3240, 2015.
- [4] Shih, C. J., Wang, Q. H., Lin, S., Park, K. C., Jin, Z., Strano, M. S., Blankschtein, D., "Breakdown in the wetting transparency of graphene", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 109, No. 17, pp. 176101, 2012.
- [5] Rafiee, J., Mi, X., Gullapalli, H., Thomas, A. V., Yavari, F., Shi, Y., Ajayan, P. M., Koratkar, N. A., "Wetting transparency of graphene", *Nat. Mater.*, Vol. 11, pp. 217-222, 2012.
- [6] Li, Z., Wang, Y., Kozbial, A., Shenoy, G., Zhou, F., McGinley, R., Ireland, P., Morganstein, B., Kunkel, A., Surwade, S. P., Li, L., Liu, H., "Effect of airborne contaminants on the wettability of supported graphene and graphite", *Nat. Mater.*, Vol. 12, No. 10, pp. 925-931, 2013.
- [7] Shih, C. J., Strano, M. S., Blankschtein, D., "Wetting translucency of graphene", *Nat. Mater.*, Vol. 12, No. 10, pp.866-869, 2013.
- [8] Driskill, J., Vanzo, D., Bratko, D., Iuzar, A., "Wetting transparency of graphene in water", *J. Chem. Phys.*, Vol. 141, No. 18, pp. 18C517, 2014.
- [9] Owens, D. K., "Estimation of the surface free energy of polymers", *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol.13, pp. 1741-1747, 1969.
- [10] Choi, T., Kim, S. J., Park, S., Hwang, T. Y., Jeon, Y., Hong, B. H., "Roll-to-roll continuous patterning and transfer of graphene via dispersive adhesion", *Nano-scale*, vol.7, pp.7138-7142, 2015.
- [11] Yoon, M. A., Kim, C., Jung, H. J., Kim, J. H., Kim, K. S., "Water contact angles of graphene transferred by wet and dry transfer methods", *Tribol. Lubr.*, Vol. 34, No. 2, pp.60-66, 2018, doi:10.9725/ks.2018.34.2.60
- [12] Du, F., Huang, J., Duan, H., Xiong, C., Wang, J., "Wetting transparency of supported graphene is reg-

- ulated by polarities of liquids and substrates”, *Appl. Surf. Sci.*, vol. 454, pp.249-255, 2018.
- [13] Israelachvili, J. N., *Intermolecular and surface forces*, 3rd ed., Elsevier, USA, pp.469-499, 2011.
- [14] Shim, J., Lui, C. H., Ko, T. Y., Yu, Y. J., Kim, P., Heinz, T. F., Ryu, S., “Water-gated charge doping of graphene induced by mica substrates”, *Nano Lett.*, Vol.12, pp. 648-654, 2012.
- [15] Kozbial, A., Li, Z., Conaway, C., McGinley, R., Dhingra, S., Vahdat, V., Zhou, F., D’Urso, B., Liu, H., Li, L., “Study on the surface energy of graphene by contact angle measurements”, *Langmuir*, Vol. 30, No. 28, pp. 8598-8606, 2014.