

## 탄소 나노튜브의 코팅에 따른 금속 메쉬 전극의 반사율 분석

김부중, 박종설, 황영진, 박진석  
한양대학교

### Characterization of reflectance of metal mesh electrodes according to CNT-coating

Bu-Jong Kim, Jong-Seol Park, Young-Jin Hwang, Jin-Seok Park  
Hanyang University

**Abstract** - This study demonstrates hybrid-type transparent electrodes for touch screen panels. The hybrid-type electrodes were fabricated by coating carbon nanotubes (CNTs) on metal meshes. For the formation of metal meshes, thin films of silver (Ag) were deposited on glass substrates using a sputtering method and then patterned via photolithography to obtain mesh structures of which line width was 10  $\mu\text{m}$  and line-to-line spacing was 300  $\mu\text{m}$ . CNTs were coated on Ag meshes by using electrophoretic deposition (EPD). For the samples of Ag meshes with/without CNTs, their surface morphologies, visible-range transmittances, and reflectances were characterized and compared. The experimental results indicated that the reflectance of Ag mesh electrodes was substantially reduced by coating of CNTs. Especially, the hybrid electrodes of Ag meshes with EPD-coated CNTs showed excellent properties such as transmittance higher than 90%, reflectance lower than 8%.

#### 1. 서 론

현재, 디스플레이, 태양전지, 터치 스크린 패널 등 다양한 전자소자의 전도성 투명전극 소재로서 가장 널리 사용되고 있는 인듐-주석-산화물(indium-tin-oxide, ITO)은 높은 광투과율과 낮은 전기적 저항 등의 우수한 특성을 가지고 있다. 그러나, ITO는 깨지기 쉬운 특성과 양질의 물성을 확보하기 위해서 비교적 높은 공정온도가 필요하기 때문에 향후 많은 응용이 기대되고 있는 유연한 전자 소자(flexible electronic devices)의 전극재료로서 적용되기에는 어려움이 있다.[1] 또한, ITO는 희귀 원소로서 그 매장량이나 생산량이 제한적이기 때문에 이를 대체할 새로운 투명 전도성 막재료 개발의 필요성이 대두되고 있다. 최근 이러한 ITO를 대체할 목적으로 탄소 나노튜브(carbon nanotubes, CNTs), 그래핀(graphene), 금속 메쉬(metal mesh), 은 나노와이어(Ag-nanowire), 전도성 고분자(conductive polymer) 등에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.[2,3]

이중에서 금속 메쉬는 다른 대체 전극보다 낮은 전기적 면저항 및 높은 투과율의 장점으로 투명전극으로 상용화하는데 가장 유력한 상황이다. 따라서, 최근 금속 메쉬 관련 연구에서는 메쉬 형태의 전극 제작 방법에 대한 연구가 활발하게 이루어 지고 있으며 상용화에 접근한 결과를 도출하고 있다. 그러나, 금속의 공통적인 성질인 높은 반사율로부터 발생할 수 있는 시인성(visibility)의 문제가 여전히 존재하고 있다. 하지만, 아직까지 반사율을 효과적으로 감소시키는 연구와 금속의 산화를 방지하여 안정성(stability)을 향상시키는 연구는 미비한 실정이다. 또 다른 전극 재료 중 하나인 CNTs는 우수한 화학적 안정성 및 기계적 강도를 가지고 있으며, 유연성 측면에서도 장점을 가지고 있는 것으로 알려져 있다. 그러나, CNTs는 튜브 형태의 구조적 물성 때문에 균일한 막막 형성이 어렵고 표면 거칠기가 비교적 크며, 튜브 사이의 큰 접합저항(junction resistance)으로 인하여 투명전극에 요구되는 전기적 특성을 만족하기에는 아직까지 미흡한 실정이다.[4] CNTs의 전기적 특성을 향상시키기 위하여 다른 소재와 혼합한 하이브리드(hybrid) 형태의 투명전극 제작에 대한 연구들이 시도된바 있다.[5] 하지만, 아직까지 전기적 특성의 한계로 인하여 투명전극으로 응용할 수 있는 분야가 제한적인 문제가 있다.

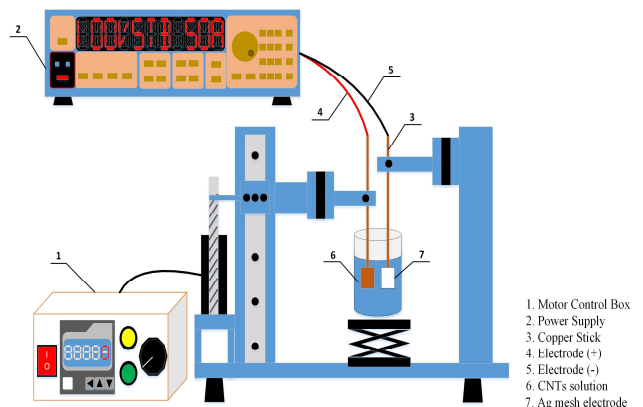
본 연구에서는 CNTs의 전기적 특성의 한계와 금속 메쉬의 반사율의 문제점을 상호 보완하기 위하여 금속 메쉬 위에 CNTs를 코팅하여 하이브리드 전극을 제작하고, 투명전극으로서의 특성 분석 결과를 제시하였다. CNTs를 코팅하기 위한 방법으로는 스프레이 코팅(spray-coating), 스핀 코팅(spin-coating), 전기영동법(electrophoretic deposition, EPD) 등 다양한 증착방법이 있다. 이 중에서 EPD 방법을 사용하여 CNTs를 금속 메쉬 위에 코팅하였고, 이에 따른 전극 시료들의 투과율 및 반사율을 측정하여 비교, 분석하였다.

#### 2. 본 론

##### 2.1 실험방법

금속 메쉬 전극을 제작하기 위하여 다음과 같은 방법으로 포토 리소그래피(photolithography)를 수행하였다. 가로, 세로가 3cm인 유리(glass) 기판 위에 스핀코팅(spin coating) 방법을 사용하여 약 2500nm 두께의 포토레지스트(photo resist, PR)를 증착하였다. 이 때 스핀코팅은 3000rpm의 조건으로 1분간 수행하였으며, 베이킹을 100°C의 오븐에서 2분간 진행하였다. 이 후 노광장치(Aligner)를 사용하여 선폭(line width) 10 $\mu\text{m}$ 이며 선 간격(line-to-line spacing)이 300 $\mu\text{m}$ 인 메쉬 형태의 패턴을 형성하였다. 100nm 두께의 은 박막은 스퍼터링을 사용하여 증착한 후 리프트 오프(lift-off)를 수행하여 은 메쉬 전극을 제작하였다. 이와 같이 제작한 은 메쉬 전극 위에 CNTs를 코팅하기 위하여 사용한 CNTs 현탁액(suspension)의 제작과정은 다음과 같다. CNTs에 포함되어 있는 비정질 탄소(amorphous carbon) 및 금속 촉매(metal catalyst) 성분 등을 제거하기 위하여 2:1 부피 비율의 황산(H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)과 HNO<sub>3</sub> 혼합 용액에 10mg의 CNTs를 넣고 초음파 발생기를 이용하여 혼합시킨 후, 교반기(agitator)를 사용하여 약 30분 동안 정제(purification)를 수행하였다. 정제된 CNTs를 진공 여과 장치(vacuum filtering system)를 사용하여 걸러내고 이소프로필알코올(isopropyl alcohol, IPA) 50ml와 질산마그네슘(Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O) 15mg을 함께 넣고 초음파 발생기에서 약 10분간 분산(dispersion) 공정을 수행한 후 원심분리기(centrifuge)를 이용하여 약 30분간 4000rpm의 속도로 가동한 후 분산이 잘 되어 있는 상층부 용액을 추출하였다. 이와 같이 제작한 CNTs 현탁액의 분산 정도를 확인하여 위하여 제타포텐셜(zeta-potential)을 측정하였고, 그 결과 약 36.1mV 정도로 나타난 바, 분산정도가 매우 안정된 CNTs 현탁액이 제작되었음을 알 수 있다.

EPD 방법은 그림 1에서와 같이 CNTs 현탁액에 은 메쉬 음극(cathode)과 구리 양극(anode)을 넣고 두 전극 사이의 거리를 10mm로 고정한 후 100V를 직류전압을 인가함으로써, 현탁액 속에서 마그네슘이온(Mg<sup>2+</sup>)을 흡수하여 양전하로 대전된 CNTs를 음극인 은 메쉬 방향으로 이동시켜 은 메쉬 위에 CNTs를 코팅하였다.[6] 이 때, 공정 시간은 60-150 s로 하여 시료를 제작하였다.

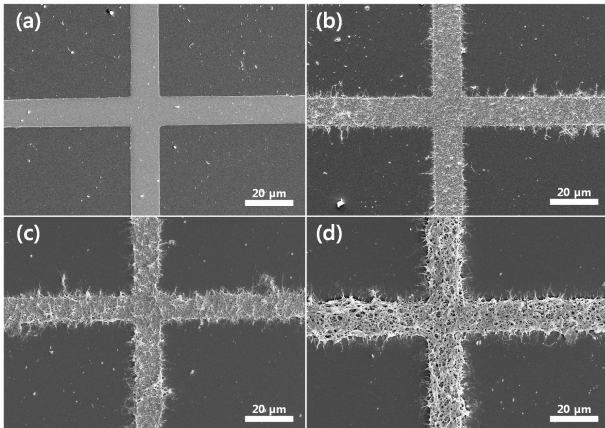


〈그림 1〉 EPD 공정 방법 개략도

은 메쉬 전극 및 EPD 방법으로 CNTs가 코팅된 은 메쉬 전극 시료들의 표면 형상을 FESEM(field-emission scanning electron microscope, SIGMA, Carl Zeiss)을 이용하여 관찰하였다. 은 메쉬 전극의 전기적 면저항은 Non-contact sheet resistance measurement(NAPSON, EC-80P)

를 사용하여 측정하였으며, 가시광 투과율 및 반사율은 Spectrum Colorimeter (Konica Minolta, CM-5)를 사용하여 측정하였다. 또한, 전극의 두께를 측정하기 위하여 고성능 단차측정기(Bruker, DektakXT-E)를 사용하였다.

## 2.2 결과 및 고찰

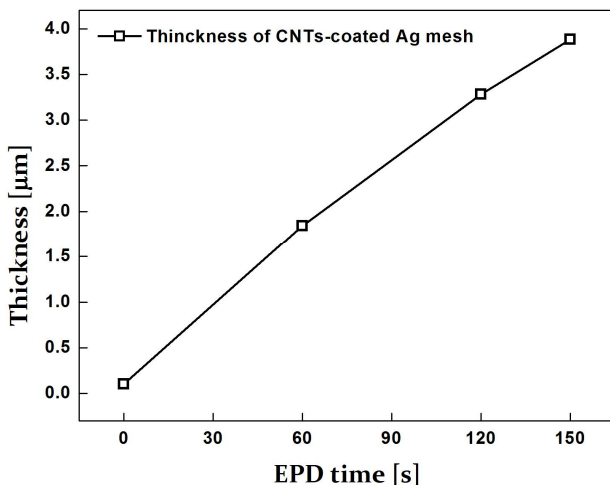


〈그림 2〉 은 메쉬와 그 위에 하이브리드 전극의 표면 형상

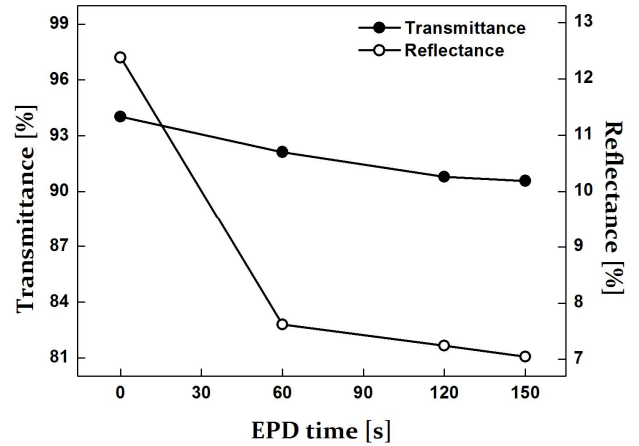
그림 2는 FESEM을 이용하여 제작한 시료들에 대한 표면 형상을 관찰한 결과이다. 그림 2(a)는 리소그래피와 스퍼터링을 통하여 증착한 은 메쉬 전극이며, 그림 2(b), (c), (d)는 은 메쉬 전극 위에 EPD 방법으로 증착한 CNTs 전극의 표면 형상으로 CNTs는 은 메쉬 표면 또는 그 주변에만 증착되어 있는 것을 확인할 수 있다. 또한, 그림 2(b), (c), (d)는 EPD 공정 시간을 각각 60s, 120s, 150s하여 제작한 시료이며, 공정시간이 늘어날수록 증착되는 CNTs가 증가하는 것을 확인할 수 있다.

그림 3는 EPD 공정 시간에 따라 하이브리드 전극의 두께 결과를 나타내었다. 약 100nm 두께의 은 메쉬 전극 위에 EPD를 60s 동안 수행하여 제작한 하이브리드 시료의 두께는 약 1.84μm로 나타났으며, 150s 동안 CNTs를 증착한 시료는 약 3.88μm의 두께로 EPD 공정 시간이 증가할수록 하이브리드 전극의 두께도 단조적으로 증가하는 것을 확인할 수 있다.

그림 4는 제작한 은 메쉬 전극 및 하이브리드 전극에 대한 투과율 및 반사율 측정 결과를 나타낸 것이다. 은 메쉬 전극은 면저항이 약 12Ω/sq이며, 투과율이 94%로 우수한 특성을 나타내는 반면에 반사율이 12.4%로 높게 나타났다. 이와 같이, 메쉬 형태의 전극에서 금속에 의해 발생한 반사율의 경우 터치 스크린 패널 전극으로 응용시 빛의 간섭에 의한 모아레 현상(moiré phenomenon)으로 시인성 문제가 발생할 수 있다.[7] 하이브리드 전극은 EPD 공정 시간이 증가할수록 은 메쉬 전극 위에 증착되는 CNTs의 두께가 증가하여 투과율이 94.0%에서 90.6%로 점차 감소하였지만, 그 폭은 미미한 것으로 나타났다. 이와는 대조적으로 반사율은 12.4%에서 7.05%로 CNTs를 코팅할 경우 큰 폭으로 감소하였다. 이러한 결과는 CNTs가 은 표면에 증착되어 후화 열화를 함으로써 은으로부터 발생하는 반사율의 증가를 감소시킨 것으로 판단할 수 있다.



〈그림 3〉 EPD 공정 시간에 따른 하이브리드 전극의 증착 두께 결과



〈그림 4〉 EPD 공정 시간에 따른 하이브리드 전극의 투과율 및 반사율

그림 4의 결과에서 보인 광학적 특성의 결과는 CNTs를 증착하기 위한 방법인 EPD에 기인한 것이다. 앞서 실험 방법에서 설명한 바와 같이, EPD는 코팅물질을 전도체 위에만 증착시키는 방법으로 EPD 방법으로 CNTs를 은 메쉬 전극 위에 코팅할 경우 그림 1(b), (c), (d)의 표면사진에서 확인할 바와 같이 은 표면에만 CNTs가 선택적으로 증착된다. 이러한 현상이 투과율의 감소를 최소화하면서 반사율을 효과적으로 개선하는 결과로 나타났다.

## 3. 결 론

본 연구에서는 은 메쉬 위에 CNTs를 코팅한 하이브리드 전극을 제작하였고, CNTs 증착 두께에 따른 표면 형상, 가시광 투과율 및 반사율의 변화를 분석하였다. 특히, EPD 방법을 사용하여 은 표면에만 선택적으로 CNTs를 증착함으로써 투과율의 감소를 최소화하는 동시에 은의 반사율은 현저히 감소시킨 결과를 확인하였다. 향후 금속 산화로 인한 열화(aging)현상과 관련한 추가적인 분석과 산화를 방지하기 위한 효과적인 방법에 대한 연구도 진행 할 예정이다. 또한, 금속 메쉬의 재료 중 하나인 구리(Cu)를 사용한 구리 메쉬 전극에 대한 연구를 진행하여 은 메쉬 전극과의 비교 분석도 진행할 예정이다. 이러한 연구들은 현재 가장 상용화에 근접한 금속 메쉬 전극의 문제점을 해결함으로써 향후 투명 전자소자의 전극재료로서 널리 활용될 가능성을 나타내는 실험적 근거자료가 될 것이라 사료된다.

## [참 고 문 헌]

- [1] J. H. Lee, W. F. Chang, C. C. Wu, C. F. Lin, J. Y. Lee, T. L. Chiu, "Fabrication of an organic light-emitting diode inside a liquid crystal display", *Thin Solid Films*, 545, 471-475, 2013.
- [2] J. W. Kim, S. W. Lee, Y. Lee, S. B. Jung, S. J. Hong, M. G. Kwak, "Synthesis of Ag Nanowires for the Fabrication of Transparent Conductive Electrode", *J. Nanosci. Nanotechnol.*, 13, 6244-6248, 2013.
- [3] J. Y. Lee, S. T. Connor, Y. Cui, P. Peumans, "Solution-Processed Metal Nanowire Mesh Transparent Electrodes", *Nano Lett.*, 8, 689-692, 2008.
- [4] J. L. Blackburn, T. M. Barnes, M. C. Breard, Y. H. Kim, R. C. Tenent, T. J. McDonld, B. To, T. J. Coutts, M. J. Heben, "Transparent Conductive Single-Walled Carbon Nanotube Networks with Precisely Tunable Ratios of Semiconducting and Metallic Nanotubes", *ACS Nano*, 2, 1266-1274, 2008.
- [5] G. Xiao, Y. Tao, J. Lu, Z. Zhang, "Highly conductive and transparent carbon nanotube composite thin films deposited on polyethylene terephthalate solution dipping", *Thin Solid Films*, 518, 2822-2824, 2010.
- [6] A. R. Boccaccini, J. Cho, J. A. Roether, B. J. C. Thomas, E. J. Minay, M. S. O. Shaffer, "Electrophoretic deposition of carbon nanotubes", *carbon*, 44, 3149-3160, 2006
- [7] M. Koshino, "Interlayer interaction in general incommensurate atomic layers", *New J. Phys.*, 17, 015014, 2015.