

# CVD 그래핀을 이용한 저저항 투명면상발열 시스템

유병욱\* 한상수\*\*

## Low-resistance Transparent Plane Heating System using CVD Graphene

Byongwook Yoo\* Sangsoo Han\*\*

**요약** 높은 CVD 그래핀저항으로 인한 낮은 발열효과를 해결하기 위해 다층으로 그래핀을 적층하여, 저저항의 광학특성이 우수한 투명 면상 발열시스템을 구현하였다. 제작한 CVD 그래핀의 발열필름으로 300mmX400mmX5mm 발열체를 제작하고, 효율적인 전력을 구동하기 위해 PWM 제어를 통한 회로를 구성하여 시스템을 구현하였다. 발열체로 사용한 4층의 CVD 그래핀 필름의 평균 면 저항 측정값은 85.5  $\Omega$ /sq이다. 따라서 저 저항의 CVD 그래핀의 구현 방법으로 열전사의 적층의 방법은 타당하다. 발열시험 결과, CVD 그래핀을 이용한 저저항 투명 면상 발열 시스템의 평균 발열 상승은 10 $^{\circ}$ C/min 이고, 86.44%의 CVD 그래핀 필름의 광투과율을 갖음을 보여준다. 따라서 제시한 발열 시스템은 대형창 유리 및 자동차 발열유리로서 적용가능하다.

**Abstract** To prevent the low heating effect of heating system caused by the high sheet resistance of CVD graphene, multi-layered graphene was laminated to implement a Transparent plane heating system with good optical properties of low-resistance. Low-resistance plane heating system implemented by 300X400X5mm heating plane laminated multi-layered CVD graphene film and PWM control system to drive efficient power. A plane resistance value of 85.5  $\Omega$ /sq was measured on average for 4-layer CVD graphene film used as a heating plane. Thus, the transfer by thermal film as the method of implementing low-resistance CVD graphene is reasonable. The experimental results of heat test show that an average heat-rise rate in low-resistance, transparent plane heating system using CVD graphene is 10 $^{\circ}$ C/min and has an optical transmittance rate of 86.44%. Therefore, the proposed heating system is applicable to large window glass and vehicle heating window-shild-glass.

**Key Words** : CVD graphene, transparent plane heating system, PWM control, 4-layer Graphene

### 1. 서론

최근 2004년 영국 맨체스터 대학의 Geim 교수와 노보셀로프 그룹은 꿈의 소재로서 그래핀의 가능성을 제시한 이후, 그래핀은 물리, 화학 재료등, 다양한 기초학문 분야에서 많은 연구가 진행되었으며, 2010년 이후에는 에너지, 반도체, 전자, 전기재료, 복합재료등, 다양한 응용분야에 연구가 집중되고 있다. 그래핀은 단결정 실리콘의 100 배에 이르는 높

은 전하이동도와 구리의 100 배에 이르는 전류밀도 특성을 가지면서 유연성과 신축성이 뛰어나고, 내화학성이 뛰어나므로 OLED전극 소재 및 봉지재, Flexible 투명소재에 적용하기 위한 연구가 활발하다. [1,9]

또한 그래핀은 높은 발열율 및 방열특성, 열복원율을 가지고 있으며, 발열응용소재로 많이 적용되는 탄소나노튜브의 열전도율이 약 3000 W/mK임에 비해

\*First Author : Department of Energy IT, Gachon University (binguki62@gachon.ac.kr)

\*\*Corresponding Author : Department of Electrical Engineering, Gachon University (sshhan@gachon.ac.kr)

Received May 10, 2019

Revised June 21, 2019

Accepted June 23, 2019

그래핀은 약 5000 W/mK 으로 발열특성면에서 더 우수한 소자로 알려져 있으나, 높은 면저항 때문에 발열소재로써 구현이 어렵다.[1-3]

현재, 기존의 발열체는 대부분 니크롬선 합금기반의 선 발열체로써 부분대상에 열을 가하고, 전체대상에 대해서 가열하지 못하므로 열손실을 유발하는 단점이 있으며, 이에 대한 대안으로 면상발열체가 최근 연구되고 있다. 특히 투명한 면상발열체는 제품의 디자인 측면에서 매우 중요하고 향후 자동차 기능성 유리 혹은 창호 유리등에 적용하려는 연구가 많이 시도되고 있다. [5-7,8,9]

이러한 투명면상발열체 기술은, ITO 증착을 이용한 투명히터, 갈륨 도핑 된 산화 아연 (Ga-doped ZnO, GZO)박막을 유리 기판위에 스퍼터링 공정으로 투명히터를 구현하거나 CNT (carbon nano tube), 혹은 은나노와이어(AgNW)등을 습식공정을 통해 스프레이 코팅방식을 이용하여 투명히터를 구현하는 방법 등의 관련기술이 현재까지 제안되고 있다. 투명히터는 균일한 저저항을 구현하는 것이 전력소비에서 실용적이므로 매우 중요하다.[2-7,9] CNT를 비롯한 투명 면상 관련 기술들은 대면적에 대해서 균일한 저저항 분포를 구현하기가 매우 어렵다. 동시에 플렉시블한 재료에 대해 구현하기가 어렵거나 구현된 경우라도 금속성분이 포함되어 있을 때는 빛의 산란 등으로 디스플레이의 특성상 적용이 제한되는 등의 경우가 매우 많다. 그러나 CVD 그래핀은 광학특성이 우수하고 플렉시블의 구현이 용이하며, CVD공법인 경우, 단일 원자층 구조로 구현되므로 대면 적에서도 균일한 저항분포를 달성하기가 용이하다[7]. 따라서 본 논문에서는 낮은 저항의 CVD 그래핀을 구현할수 있다면 투명 면상발열체로써 매우 적합하다는 점에 착안하여, 면상의 투명 히터를 제작하고자 하였다.

그래핀의 단점인 높은 면저항에 대한 해결방법으로써, 최근 저저항용 에칭용액이 일부업체에서 공급되고 있는바, 이 용액을 이용하고 에칭공법을 개선한다면 그래핀의 높은 면저항을 일부 개선할 수 있을 것으로 판단하였다. 그러나 투명히터에 적합하기 위해서는 면저항이  $100\Omega/\text{sq}$ 에서 수십 $\Omega/\text{sq}$ 이하여야 하므로 이를 해결하기 위한 방법으로, 다층으로 그래

핀을 구현한다면 고저항 문제를 해결할 수 있고, 광학특성이 우수한 대면적의 투명 면상 발열시스템 구현이 가능할 것으로 판단하였다.

발열체에 대한 효율적인 전력을 구동하기 위해 PWM 제어를 통한 회로를 구성하여 시스템을 구현하고자 하였다.

## 2. CVD 그래핀의 발열 시스템

### 2.1. 저저항 투명면상 발열 시스템의 구성

그림1에 투명면상발열체를 구동하기 위한 시스템 블록도를 나타내었다. 구성된 시스템의 전원입력부는 12[V]이상 최대 34[V]가 입력되어 제어부로 입력된다. 전원출력부는 DC 12V ~120V 까지 조정 가능하고 출력전류는 최대 DC 60A 공급되도록 구성하였으며, 최대 1000[Watt]의 전력공급이 가능하도록 설계하였다.

300mmX400mmX5mm의 강화유리 기판 위에, 구현된 그래핀 발열필름을 합착하여 발열성능을 실험하기 위한 면상발열체로 사용하였다. 구성된 발열체의 상판에 대해 10mm 위쪽에 4개의 적외선 온도센서(Melexis사 MLX90614)를 설치하였고, 각각의 위치는 임의의 정간 격으로 정하였으며 비접촉으로 온도를 검출하였다.

구성한 발열체의 상판에 대해 10mm 위쪽에 4개의 적외선 온도센서(Melexis사 MLX90614)를 설치하였고, 각각의 위치는 임의의 정간 격으로 정하였으며 비접촉으로 온도를 검출하였다.

온도검출부는 아두이노 Mega2650을 이용하여 구성하였으며, 온도 검출하여 평균온도의 정보를 제어부로 입력하도록 하였다. 제공된 온도입력정보를 이용하여 전원출력부의 전압을 최대 5KHz PWM방식에 의하여 제어하도록 시스템을 구성하였다. 출력 전압은 사전에 발열체의 저항에 따라 최대전압의 목표에 맞게 임의의 조정이 가능하도록 구성하였다.

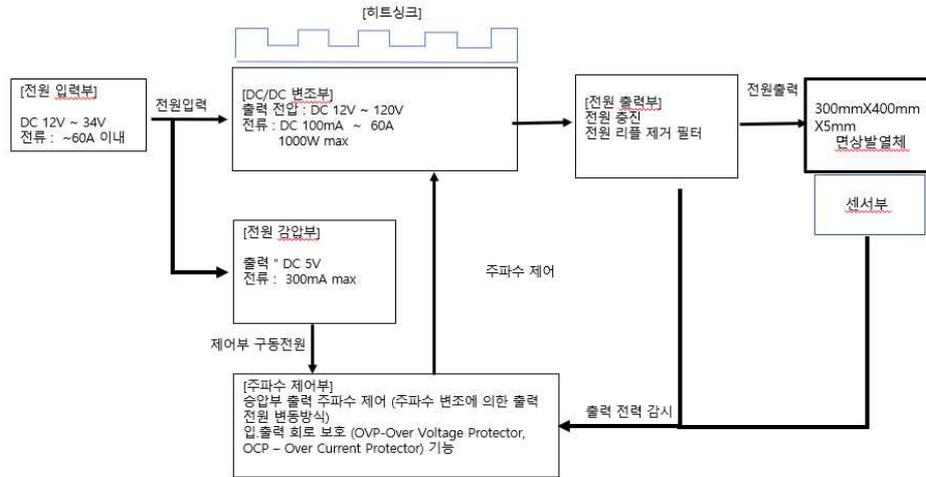


그림 1. 저저항면상발열체 시스템 구성도  
Fig. 1. Block diagram of Low-resistance plane heating system.

**2. 저저항 다층구조의 CVD 그래핀의 제작**

대면적의 면상에서 발열기능을 갖기 위해서는 그래핀의 면저항이  $100\Omega/\text{sq}$ 이하 ~  $수\Omega/\text{sq}$  정도이어야 1A 전류에서 효과적인 발열이 가능하다.

그러나 합성된 그래핀의 저항은  $1M\Omega$  정도로 매우 크다. 따라서 저저항의 그래핀의 구현을 위한 대면적용의 그래핀 에칭용액과 관련 에칭기술의 확보가 중요하고 이를 개선하기 위한 연구가 현재 활발하다.[1,2] 본 연구에서는 그래핀을 구현하기 위해서 금속 위에 고온에서 가스를 분해하는 Bottom up 방식의 화학기상 증착법을 선택하였으며, Cu를 촉매로 이용하여  $1000^{\circ}\text{C}$  화학 기상 증착하였다. 구해진 합성된 CVD 그래핀에 대해 그림2와 같이  $25\mu\text{m}$  PI전사 필름과 합지하였다. 그림 3에 합지된 결과물을 나타내었다. 합지된 결과물에 대해 에칭공정을 수행하였다. 사용한 에칭용액은 그래핀의 면저항이  $200\Omega/\text{sq}$  이하로 가공되는 에스제이유(주)의 에칭액 SGE-150을 이용하여 그래핀의 면저항을 개선시켰으며, 이에 대해 면저항을 평가하였다. 에칭으로 개선된 그래핀의 면저항은  $200\Omega/\text{sq}$ 이하이다. 이에 대해 적층을 통하여  $100\Omega/\text{sq}$  이하로 면저항을 구현하기 위해 그림4의 공정을 반복하였다. 저저항 다층 구조

CVD 그래핀 제작 공정은 그림 4와 같다. 공정 (1)에서 합성된 그래핀의 금속촉매와 합지된 PI 전사 필름에 대해 에칭으로 금속기판을 제거한다.



그림 2. 에칭전 그래핀 필름의 구조  
Fig. 2. Structure of graphene film before etching process.



그림 3. PI 전사필름위에 구성된 그래핀  
Fig. 3. Graphene on PI transfer film.

금속촉매가 제거된 것을 공정 2에 나타내었다. 공정 (3)에서 PET를 합지하고, PI전사필름을 제거한다. 공정 (4)는 PET에 그래핀층이 구현된 것을 나타낸

것이다.

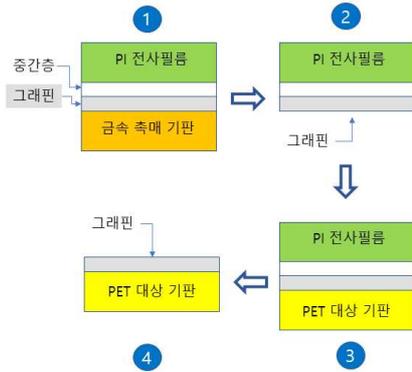


그림4. 다층구조 그래핀 제작을 위한 공정도  
Fig. 4. Process diagram for making graphene of multi-layered structure.

PI전사필름과 합성된 CVD 그래핀의 합지를 위한 라미네이팅 조건은 롤 폭, 롤 직경, 압력, 온도, 속도의 다양한 라미네이팅 조건에 따른 그래핀의 전사 거동을 면밀히 관찰하여 조건을 설정하였다.

### 2.3. 대면적 투명 면상 발열체의 제작

본 연구에서 투명 면상 발열 시스템에 사용한 적층된 다층의 투명한 CVD 그래핀의 필름에 대해 OCA 필름을 그래핀 필름에 합지하여 그림 5와 같은 복합구조의 필름으로 제작하고, 이를 5mm 강화유리에 부착하여 시험에 사용하였다.

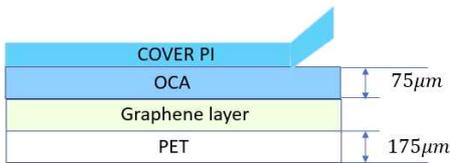


그림 5. 발열용 CVD 그래핀 필름의 구조  
Fig. 5. The structure of heating CVD graphene film.

본 연구에서는 에칭 장비에서의 구현이 가능한 최대 크기를 고려하여 그림6과 같이 시료를 300mmX400mmX5mm의 크기로 3개의 시료를 제작하여 발열평가에 대해 실험하였다.



그림 6. 300X400X5 mm 발열유리  
Fig. 6. 300x400X5 mm heating glass.

### 3. 결과 및 고찰

그림 4에서의 PI전사를 통하여 제작된 필름에 대해 오픈에서 전사필름을 제거한 300mmX400 mm CVD 그래핀 필름을 그림7에 나타내었다.

그림7의 1회 적층된 크기 300mmX400mm의 CVD 그래핀 필름에 대해서 접촉식 probe 4point 측정방법으로 Low Resistivity meter기에 의한 면저항값을 측정하고 평가하였다. 샘플 10개에 대해 각각 1회씩 모두 총 10회 측정된 결과, 평균 191.1Ω/sq을 나타내었다.

이에 대해 4층의 적층된 그래핀 필름에 대해서 동일한 방법으로 면저항을 측정하여 평가한 결과를 표1에 나타내었다.



그림 7. 전사필름이 제거된 CVD 그래핀 필름  
Fig. 7. CVD graphene film in which transfer film removed.

표1에 나타난 것과 같이 80%의 샘플에 대해 면저항 100Ω/sq 이하를 구현 할 수 있었으며 4층인 경우의 그래핀의 면저항은 평균 85.5Ω/sq을 나타내었다. 적층된 그래핀의 광특성을 고찰하기 위해 투과율을 확인하였다. 그림 7의 PET에 적층된 그래핀 필름에 대해 UV-visible Spectrophotometer를 이용

표 1. 4층 CVD 그래핀 필름의 측정된 면저항  
Table 4. Measured sheet resistance of 4 layer CVD graphene film. 단위:Ω/sq

샘플 1	샘플 2	샘플 3	샘플 4	샘플 5
88	69	73	101	103
샘플6	샘플 7	샘플 8	샘플 9	샘플10
93	64	95	87	82

하여 KS M ISO 시험규격에 따라 200~800 nm의 파장영역에서 550nm에 대해 5회 광투과율을 측정하였으며 평균 86.44%의 투과율을 나타내었다.

발열실험을 위하여 300mmX400mmX5mm 발열체 표면에 온도센서를 설치하여 필름의 표면온도를 측정하였으며, 평가를 위한 온도측정은 적외선 온도계를 이용하여 4포인트의 표면온도를 평균하여 평가하였다.

표 2, 발열시스템의 전력에 따른 결과  
Table2. The result according to the power in the heating system.

전압 (Volt)	전류 (A)	전력 (Watt)	종료온도 (°C)	시작온도 (°C)	인가시간 (sec)	상승온도 (°C)
90	1.4	126	44	22	120	22
100	1.3	130	42.8			20.8
110	1.3	143	41			19

출력전압은 90[V]~110[V] 1.3[A]~1.4[A]를 공급하였을 때 평균값 50°C Max 까지 단계별 측정된 결과, 300mmX400mm 면적에서의 발열 속도는 평균 10°C/min, 상온 22°C±0.1 의 시작온도에서 50°C까지 상승함에 있어서 약 3분간 28°C 발열상승속도를 얻었다.

표2를 고찰한 결과, 상온 22°C에서 120초간 전력을 인가한 경우 평균 20.6°C 상승을 보였으며 분당 10°C 이상의 온도 상승을 나타내었다.

따라서 5mm 강화유리가 아닌 열전달율이 낮은 물질로 투명면상발열체의 기판의 시료를 제작한다면 제작된 복합필름에 대해 표면의 발열온도는 더욱 급속히 상승될 것으로 판단된다. 향후 발열필름이 부착된 기판의 열전도율에 따른 발열필름의 발열효과에 대해

추가적인 실험이 요구된다.

### 4 결론

면상발열을 위한 저저항의 CVD 그래핀 필름의 구현방법에서 4층의 적층을 위한 열전사 방법에서 평균 85.5 Ω/sq 의 저항값을 보인 것으로 보아 적층의 구현 방법이 타당함을 알 수 있었으며 저저항이 요구되는 CVD 그래핀의 구현방법으로 매우 유용할 것으로 판단된다.

300mmX400mmX5mm 투명 면상 발열체에 대해 발열을 진행한 결과, 평균 10°C/min 의 발열상승 속도를 얻을 수 있었다.

제작한 투명한 CVD 그래핀 필름의 투과율이 86.44%를 보인 것과 Graphene 면저항을 50Ω이하~ 수Ω 이하로 낮춘다면, 투명하면서 발열기능 발열속도를 판단할 때, 향후 디자인이 요구되는 대형창

발열 유리에 적용가능하다. 또한 자동차의 경우, 뒷면 유리의 열선의 저온실험이 -20°C에서 10분간의 발열 결과를 기준으로 하는 것을 고려할 때, 10°C/min 의 발열상승 속도를 보인 것은 대면적이 요구되는 자동차의 윈드실드 글라스의 디포그용 발열유리로서 충분히 활용 가능하다.

### REFERENCES

[1] Seoung-Ki Lee, Jong-Hyun Ahn, "Graphene based Transparent Conductive Film: Status and Perspective," *Journal of the Korean Ceramic Society* 50(5), 309- 318, september, 2013.

[2] Hyunsu Cho, Jin-Wook Shin, Nam Sung Cho,

- Jaehyun Moon, Jun-Han Han, Young-Duck Kwon, Seungmin Cho, Jeong-Ik Lee, "Optical Effects of Graph -ene Electrodes on Organic Light -Emitting Diodes", *IEEE Journal of Select -ed Topics in Quantum Electronics*, Vol. : 22, Issue :1, Jan.-Feb. 2016.
- [3] Sora Shin, Hae-Hyun Choi, Yung Bin Kim, Byung-Hee, Ho, Joo-Young Lee, "Evaluation of body heating protocols with graphene heated clothing in a cold environment", *International Journal of Clothing Science and Technology*, 29, 830 -844 ,2017.
- [4] Sangmin Kang, Haehyun Choi, Soo Bin Lee, Seong Chae Park, Jong Bo Park, Sangkyu Lee, "Efficient Heat Generation in Large Area Graphene Films by Electrom agnetic Wave Absorption" *2D Mater.* 4, 025037 2017.
- [5] H. Y. Juen, C. K. Lee, J. Bae, S. J. LEE , "A Study on the Performance Test and Verification of Heat Transfer characteri -stic in Automobile Rear Window Heater ", *Journal of the Korea society for power system engineering*, Vol.9, No2, pp73- 80, 2005.
- [6] A. A. Balandin, S. Ghosh, W. Bao, I. Cal -izo, D. Teweldebhran, F. Miao, "Super -ior Thermal Conductivity of Single Layer Graphene," *Nano Lett.*, 8 902 -07, 2008.
- [7] G. Jo, M. Choe, C.-Y. Cho, J. H. Kim, W. Park, S. Lee, W. K. Hong, T.W. Kim, S. J. Park, B. H. Hong, Y. H. Kahng, T. Lee, "Large scale Patterned Multi-layer Graphene Films as Transparent Conduc ting Electrodes for GaN Lightemitting Diodes," *Nanotechnol.*, 21, 2010.
- [8] Sukang Bae, Seoung-Ki Lee, Min Park " Large Scale Graphene Production Techni -ques for Practical Applications", *Applied Science and Convergence Technology Vol. 27 No.5*, pp79-85, 2018.
- [9] Sang-Hoon Bae, Roxana Shabani, Jae -Bok Lee, Seung-Jae Baeck, Hyoung Jin Cho, Jong-Hyun Ahn, " Graphene Based Heat Spreader for Flexible Electronic Dev -ice", *IEEE Trans. on Electron Devices Vol. 61*, pp4171-4175, Issue 12, 2014.
- [10] Sunghoon Jung, Wonmin Ahn, Do-Geun Kim, "Development of AgNW/Reduced Graphene Oxide Hybrid Transparent Eelectrode with Long-Term Stability Using Plasma Reduction", *Journal of The Korean Institute of Surface Engineering 49(1)*, pp 87-91, 2016.

---

**저자약력**


---

**유 병 옥 (Byongwook Yoo)****[일반회원]**

- 1988년 명지대학교 대학원 전자공학과 (공학석사)
- 1999년 명지대학교 대학원 전자공학과 (공학박사)
- 2015 - 현재 가천대학교 에너지IT학과 겸임교수

전력전자제어  
 <관심분야> 인공지능, 그래핀신소재, IOT

**한 상 수 (Sangsoo Han)****[평생회원]**

- 1985년 명지대학교 대학원 전자공학과 (공학석사)
- 1995년 홍익대학교 대학원 전자공학과 (공학박사)
- 1989 - 현재 가천대학교 전기공학과 교수

지능 및 퍼지제어  
 <관심분야> 전력전자제어 로봇시스템제어 임베디드 하드웨어 설계, IOT