

Carbon nanotube 합성 및 EDLC 응용에 관한 연구

김영훈^{***}, 박달근^{*}, 이중기^{*}, 주재백^{**}, 손태원^{**},
^{*}한국과학기술연구원, ^{**}홍익대학교 화학공학과

A Study on the synthesis of carbon nanotubes and their application of EDLC

Young Hoon Kim^{***}, DalKeun Park^{*}, Joong Kee Lee^{*}, Jeh Beck Ju^{**},
 Tae Won Sohn^{**},

^{*}Korea Institute of Science and Technology,
^{**}Dept. of Chem. Eng., Hongik University

서론

전기이중층 축전기(electric double layer capacitors: EDLC)가 갖는 에너지저장 메커니즘이 산화 환원과정이 있는 thermodynamic인 메커니즘에 의존하는 배터리와는 달리 매우 빠르고 가역적인 이온들의 운동학적인 메커니즘에 기인하는 것이어서 충전속도가 빠르고 충·방전 효율이 높으며 수명이 매우 길다. 탄소나노튜브는 가벼우면서도 높은 전기전도도와 화학적 안정성 및 큰 비표면적 등의 전기화학적 특성이 우수하여 전극 활물질로 매우 우수한 물성을 지니고 있기 때문에 탄소나노튜브를 초고용량 EDLC의 전극 소재로 사용하려고 한다. 또한 탄소나노튜브는 모든 표면적이 밖으로 노출되어있어 100% 용량발현에 기여 할 수 있어 탄소나노튜브가 초고용량 EDLC의 전극 활물질로 충분한 가능성이 있다고 판단되다.[1,2]

본 연구에서는 아세틸렌과 수소로부터 SUS304 plate에 탄소나노튜브 증착시 반응기로 공급되는 아세틸렌과 수소의 유량비가 탄소나노튜브증착에 미치는 영향을 연구하였으며 또한 각각의 탄소나노튜브로부터 EDLC를 제작, 충·방전특성을 비교하였다.

실험

1) 시편준비

증착에 사용된 시편은 SUS304 plate이다. 반응기에 장입 되기 전에 시편 표면에 존재할 수 있는 불순물을 제거하기 위하여 2000방 sandpaper와 Buehler사에서 제조한 Grinder-polisher를 사용하여 polishing을 한 후 초음파세척기를 사용하여 아세톤에서 10분, 메탄올에서 10분간 순차적으로 세척하였다. 그리고 25wt% HF용액에 시편을 200초간 etching 하였다.

실험장치

Plasma CVD 반응기는 vertical type으로 직경이 78 mm 이고, 길이는 350 mm, 두께는 3 mm인 석영관으로 cold wall type 이다. 시편은 반응기 내의 수평판형 전기저항 히터 위에 올려진다. 석영관 주위의 구리코일에 RF전기장을 걸어주어 플라즈마를 생성시키게

되어있다. 가스는 반응기 위에서 아래의 시편으로 흘러가게 되어있다.

실험방법

시편을 polishing하고 세척 한 후 HF etching한 시편을 반응기에 장입시켰다. 반응기내의 압력을 10^{-3} torr로 낮춰주고, 반응기 내의 온도를 증착 온도까지 올린다. 반응기내의 온도가 증착온도에 이르면 H_2 를 주입시키면서 압력을 10torr로 맞추고 plasma(80W)를 인가하여 treatment한다. 5min동안 treatment한 후 아세틸렌을 공급한다. 이때 아세틸렌과 수소의 유량비는 1 : 3 ~ 1 : 30으로 유지한다. 반응기 압력 10 torr에서, plasma는 60 w로 하고 실험하였다. 시편위에 증착 된 carbon nanotube를 이용해 다른 처리 없이 그 상태로 capacitor cell 조립하여 충·방전 시험을 해 보았다. 전처리 조건 Table 1. PECVD 증착 조건은 Table 2.에 수록되어 있다.

Table 1. Conditions for treatment by H_2 plasma

temperature (°C)	pressure (torr)	H_2 (sccm)	plasma power (W)	reaction time (min)
700	10	26	80	5

Table 2. Conditions of PECVD

Setting temperature(°C)	R.F power (w)	Reactor pressure (torr)	Growth time (min)	Gas flow rate (SCCM)	
				C_2H_2	H_2
700	60	10	5	1~8.7	26~30

Capacitor 조립 및 충·방전 시험

SUS304 plate에 증착된 carbon nanotube를 이용하여 capacitor를 조립하였다. 전해질로는 유기 전해질을 사용하였고, 용매로는 EC (ethylene carbonate) EMC (ethyl methyl carbonate)를 (1 : 1)의 부피비로 혼합한 것을 사용하였고, 리튬염은 1M-LiPF₆를 사용하였다. Separator로는 polypropylene (PP)를 사용하였다. 모든 전지의 조립은 dry room 내에서 행해졌고, 제조된 전지의 충·방전 특성은 Won A Tech에서 제조한 WBCS 3000을 사용하였다. 작동전압 2.0 V, 0.6 mA의 일정한 전류에서 충·방전시험을 하였다.

결과 및 고찰

Fig. 1, 은 기관위에 증착된 carbon nanotubes이고, Fig. 2, 는 C_2H_2 : H_2 유량비에 따른 carbon nanotubes의 무게증가를 나타내었다. 플라즈마화학증착에서 아세틸렌과 수소의 공급비가 1:3에서 1:10으로 낮아지면 초기 성장속도는 낮아지지만 성장속도의 감소도 개

선된다. 아세틸렌과 수소의 공급비가 1:3으로 더욱 낮아지면 성장속도 또한 더욱 낮아지지만 탄소 증착은 성장개시 후 60분이 되어도 멈추지 않는다. 이렇게 증착된 탄소를 이용하여 커패시터를 제작하여 충방전 실험한 결과가 아래 그림에 되어 있는데 탄소성장 속도가 느린 대신 충방전 특성은 개선되었음을 알 수 있었다. 그러나 아세틸렌과 수소의 공급비가 1:3으로 60분 동안 증착된 탄소의 양은 공급비가 1:3으로 3분 동안에 증착된 양의 약 2배 정도로 증착속도가 매우 느리다.

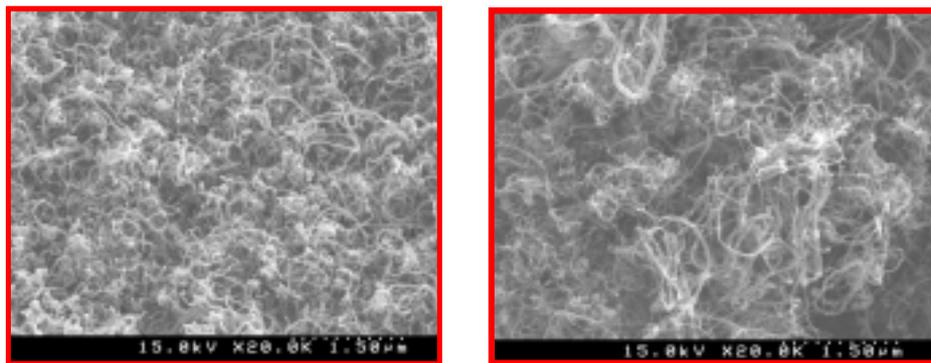
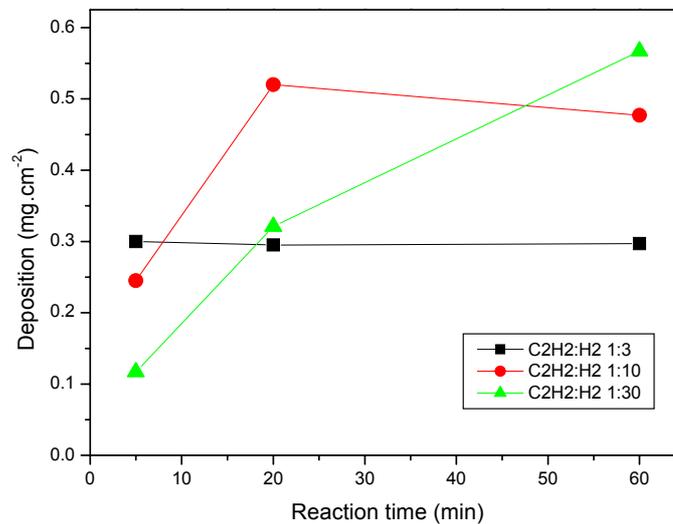
a) C₂H₂ : H₂ (1:3)b) C₂H₂ : H₂ (1:30)

Fig. 1 SEM micrography of carbon nanotube on stainless steel

Fig. 2 CNT of weight by C₂H₂:H₂ ratio

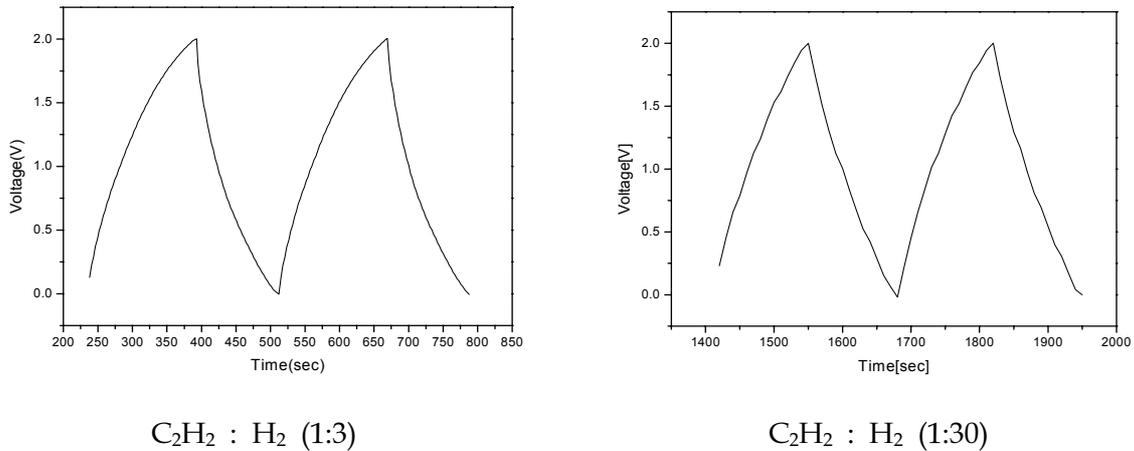


Fig. 3 Capacitance of EDLC made with carbon nanotube electrodes

Fig. 3은 아세틸렌과 수소의 유량비를 변수로 PECVD법으로 증착시킨 탄소나노튜브에 유기 전해질(1M-LiPF₆ /EC-EMC)을 사용하여 Capacitor조립 후 충방전 시험한 결과이다. 아세틸렌과 수소의 유량비에 따른 방전용량결과 약80F/g으로 용량에는 큰 차이는 없었으나 용량효율은 75%→95%로 증대되었다.

참고문헌

- 1.Lee, S. W., Park, D., Lee, J. K., Ju, J. B., and Sohn, T. W.: *Korea J. Chem. Eng.*, **18**(3), 371(2001).
- 2.Lee, Y. H., Bae, D. J., An, K. H., Lim, S. C., Moon, J. M., Choi, Y. C., Park, Y. S., Kim, W. S., Kim, K. S.:*Carbon Science* 2(2) 120(2001).
- 3.Xie, S. S., Chang, B. H., Li, W. Z., Pan, Z. W., Sun, L. F., Mao, J. M., Chen, X. H.: *Adv Mater.* **11**, 1135(1999).
- 4.Niu, C., Sichel, E. K., Hoch, R., Moy, D., and Tennent, H.: *Appl. Phys. Lett.*, **70**(11), 1480(1997).
- 5.Ma, R. Z., Liang, J., Wei, B. Q., Zhang, B., Xu, C. L. and Wu, D. H.: *J. Power Sources*, **84**, 126(1999).