

산화그래핀 박막 코팅기술 개발 및 특성평가

천영아* · 남진수** · 손경수** · 임영태** · 안원기** · 정봉근**

* 서강대학교 기계공학과, ** LG전자 MC연구소 MT실

Development and Analysis of Graphene Oxide Thin Film Coating

Yeong Ah Cheon*, Jin-su Nam**, Kyung Soo Son**, Young Tae Im**,
Won Kee Ahn** and Bong Geun Chung*†

* Dept. of Mechanical Engineering, Sogang Univ.,

** MT Dept. of MC R&D Center, LG Electronics, Seoul, Korea.

(Received February 26, 2015 ; Revised March 18, 2015 ; Accepted March 20, 2015)

Key Words: Graphene Oxide(산화그래핀), Spin-spray Coating(스핀-스프레이 코팅), Thin Film(박막), Transparency(투명도)

초록: 산화그래핀 소재를 합성하여 투명한 박막 코팅기술을 개발하고 특성을 평가하였다. 스핀과 스프레이 공정을 동시에 이용하여 산화그래핀을 유리 기판에 균일하게 박막코팅을 하였다. 균일하게 산화그래핀을 스핀-스프레이 공정을 이용하여 박막코팅을 하기 위하여 유리기판을 amine-functional group으로 표면개질을 하였다. 또한, 스핀-스프레이 공정을 이용하여 산화그래핀 박막을 4층까지 적층을 하였고 86% 이상의 투명도를 확보하였다. 이와 같은 합성된 산화그래핀 박막소재의 스핀-스프레이 코팅 기술은 다양한 전자제품들의 display를 대면적으로 코팅할 수 있을 것으로 기대되어진다.

Abstract: In this study, we synthesized graphene oxide and developed novel spin-spray coating technology. The graphene oxide thin film was uniformly coated on amine-functionalized glass surfaces using spin-spray coating technology. We also stacked up to four layers of graphene oxide on glass substrates in a uniform manner. From the results, we infer that this spin-spray coating of graphene oxide thin film could be a powerful tool for various electronic display coating applications.

1. 서론

스마트 기기들의 발달과 더불어 높은 기능성을 갖춘 디스플레이에 대한 요구가 점점 증가함에 따라 내구성과 내스크래치성 등 다양한 기능을 제공하는 코팅기술이 부각되고 있다. 코팅기술은 크게 모재에 새로운 특성을 부여하거나 성능을 향상시키는 기술로 분류될 수 있다.⁽¹⁾ 최근 디스플레이에 적용되고 있는 코팅기술은 그래핀, 탄소나노튜브와 같은 신소재를 이용하거나 자연현상을 모방한 마이크로/나노구조체를 응용하는 등 주로 나노기술을 기반으로 발전을 거듭하고 있

다. 이러한 기능성 박막 제조 기술 및 코팅기술은 디스플레이 산업에만 국한되지 않고 자동차의 기능성 유리, 유기태양전지, 투명전극 등 다양한 분야에 광범위하게 응용되고 있기 때문에 다양한 소재 및 코팅법을 개발하는 것이 무엇보다 중요하다.

그래핀(graphene)은 육각형 구조의 탄소원자들이 규칙적으로 배열된 단층의 물질이다. 이들의 형태를 공모양으로 만들면 풀러렌(fullerene), 돌돌 말아주면 탄소나노튜브(carbon nanotube), 겹겹이 쌓게 되면 흑연덩어리(graphite)가 된다.⁽²⁾ 최근의 많은 과학자들의 연구대상이 되고 있는 그래핀은 그들이 갖고 있는 우수한 물리적, 화학적 성질로 인해 그 응용범위가 무궁무진하여 꿈의 신소재라

† Corresponding Author, bchung@sogang.ac.kr

불리하고 있다.⁽³⁾ 한 겹의 그래핀을 얻기 위해서 chemical vapor deposition(CVD)방식을 이용하여 고순도의 그래핀을 성장시키는 방법에서부터 스키치 테이프를 이용하여 흑연으로부터 한 겹 떼어내는 방법까지 다양한 시도가 이루어지고 있지만 대량생산에는 적합하지 못한 방법들이었다. 그래핀을 대량생산하기 위한 목적으로 산화흑연(graphite oxide)을 합성한 후 초음파 분쇄를 통해 얻게 된 산화그래핀(graphene oxide)은 수용액 상태에서 안정하고 산소관능기의 존재로 인해 복합재료로 응용이 가능하다는 장점 때문에 최근에는 산화그래핀 자체로서의 연구도 활발하게 이루어지고 있다.

그래핀의 2차원 구조는 필름을 제조하거나 다양한 모재에 코팅하기에 매우 적합하다. 실제로 그래핀 기반의 플렉서블 디스플레이나 투명전극 개발에 많은 관심이 쏟아지고 있지만 고순도의 그래핀을 필요로 하기 때문에 비용적인 측면이나 생산성의 문제점이 여전히 걸림돌이다. 그리하여 저비용으로 그래핀을 코팅하고자 다양한 코팅기술이 도입되고 있으며 이러한 기술에는 딥 코팅(dip coating),⁽⁴⁾ 스핀 코팅(spin coating),⁽⁵⁾ 스프레이 코팅(spray coating),⁽⁶⁾ 전기영동법(electrophoresis)⁽⁷⁾ 등이 있다. 하지만 위와 같은 습식 코팅방법은 그래핀 또는 산화그래핀을 다층으로 쌓았을 경우, 투명도를 확보하기 어렵기 때문에 그래핀 기반 필름의 두께와 균일도를 조절하는 기술이 무엇보다 중요하다. 본 연구에서는 스핀코팅과 스프레이 코팅을 응용한 스핀-스프레이 코팅 기술을 활용하여 높은 균일도를 갖는 투명한 산화그래핀 박막을 제조하고 특성평가를 실시하였다. 스핀-스프레이 코팅기술은 그동안 그래핀 박막제조기술의 문제점인 고비용, 저효율적인 측면을 개선하고 손쉽게 대면적 그래핀 박막을 제조하여 그래핀을 다양한 산업에 적용시킬 수 있을 것으로 기대되어진다.

2. 실험

2.1 실험개요 및 재료

산화그래핀의 박막을 형성시키기 위해서는 화학적 박리법으로 대면적의 단일한 산화그래핀을 합성해야 한다. 일반적으로 강산을 이용하여 흑연을 산화시켜 산화흑연을 제조한 후, 초음파 분쇄를 통하여 단일 산화그래핀 시트를 얻는다.⁽⁸⁾

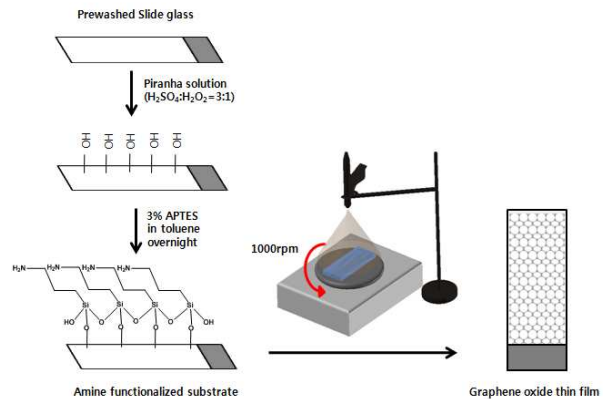


Fig. 1 Schematic coating process of the graphene oxide film

제조한 산화그래핀 용액을 이용하여 스핀 코팅, 스프레이 코팅, 그리고 스핀-스프레이 코팅을 실시한다. 농도 및 적층횟수에 따른 산화그래핀 박막을 분석하여 86% 이상의 높은 투과도를 갖는 대면적의 산화그래핀 코팅을 위한 조건을 최적화하였다.

2.2 산화그래핀 합성법 (Hummers method)

흑연 1g을 황산(H_2SO_4) 50mL에 과망간산칼륨($KMnO_4$) 5g과 함께 얼음 속에서 2시간 동안 반응시킨다. 얼음을 제거한 후, $40^\circ C$ 에서 1시간 동안 추가적으로 반응시킨다. 1시간 후, 증류수 50mL을 dropping funnel을 이용하여 천천히 첨가하고 추가적으로 150mL의 증류수를 첨가한 후 1시간 동안 추가적으로 반응시킨다. 과산화수소(H_2O_2) 10mL을 첨가하게 되면 용액의 색깔이 노란색으로 바뀌면서 반응이 종료된다. 5% HCl과 증류수로 세척하여 합성된 graphite oxide의 잔여 산을 제거한 후 오븐에서 건조시킨다. 합성된 graphite oxide를 반복적인 초음파 분쇄와 원심분리를 통하여 graphene oxide를 얻는다.

2.3 기판 전처리 및 코팅방법

Slide glass 표면에 존재할 수 있는 이물질이나 유기물을 제거하기 위해 아세톤과 에탄올을 이용하여 1차 세척을 실시한 후, piranha solution ($H_2SO_4:H_2O_2=3:1$)을 이용하여 glass 표면을 깨끗하게 세척한다(Fig. 1). 세척된 slide glass의 표면에 3% 3-aminopropyltriethoxysilane(APTES)을 이용한 silanization을 통해 uniform하고 높은 밀도의 amine group(NH_2)을 형성시켜 높은 접합강도로 코팅이 이루어질 수 있도록 전처리를 실시하였

다. APTES solution을 톨루엔 용액에 3%의 농도로 제조한 후, 세척된 slide glass를 overnight으로 담궈둔다. 깨끗한 톨루엔을 이용하여 여러 번 세척하여 glass 표면에 흡착되지 못한 amine group을 제거해 준다. 잘 세척된 slide glass를 질소 가스로 건조시킨 후 80°C 오븐에서 1시간 동안 건조시켜 준다. 에탄올과 증류수를 9:1의 비율로 섞인 혼합용액에 산화그래핀 용액을 농도에 따라 초음파 분쇄로 잘 분산시켜 준비한다.

2.4 스펀코팅

Amine functionalization된 slide glass를 스펀코터 위에 장착한 후, 일정 농도의 산화그래핀 용액을 도포하여 기판을 1000rpm이상으로 회전시켜 원심력에 의해 박막을 형성시킨다. 이때 박막의 두께와 표면조도는 산화그래핀 용액의 농도, 스펀코터의 rpm에 따라 조절된다.

2.5 스프레이 코팅

Amine functionalization된 slide glass를 고정시킨 후, spray gun의 노즐을 통해 가스를 매개체로 산화그래핀 용액을 기판 표면에 분사한다. 이때 압력은 10psi로 고정하고 spray gun의 분사량을 조절하여 코팅을 실시한다. 분사속도 및 기판과 노즐사이의 거리는 각각 100 μ L/min, 20cm로 고정한다. 스프레이 코팅을 이용한 박막형성은 기판과 노즐 사이의 거리 및 분사되는 용액의 양과 속도, 노즐의 지름에 의해 박막의 두께와 표면조도를 조절할 수 있다.

2.6 스펀-스프레이 코팅

스핀코팅에 spray gun을 접목한 형태의 코팅방식으로, 스펀코터 위에 기판을 장착시킨 후 spray gun을 통하여 용액을 분사시키는 동시에 일정한 rpm으로 회전시켜 박막을 형성시키는 방법이다. 스펀-스프레이 코팅은 위의 스펀코팅과 스프레이 코팅의 조건을 그대로 적용한다.

2.7 산화그래핀 특성평가 및 박막 분석

투과전자 현미경(TEM)을 통하여 산화그래핀의 구조 및 형태를 분석하고 UV-visible spectro photometer와 fourier-transform infrared spectroscopy (FT-IR)을 통하여 산화그래핀의 특성 peak와 성분분석을 통해 합성유무를 판단한다. 산화그래핀 박막이 형성된

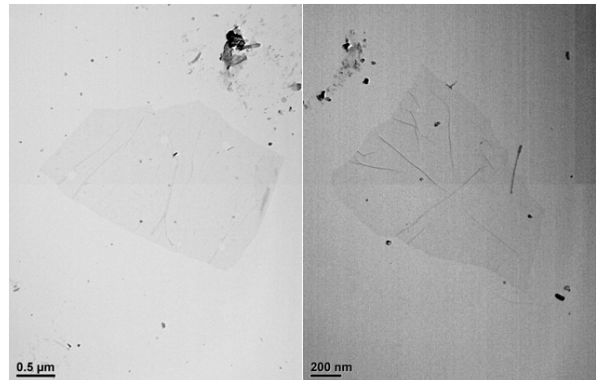


Fig. 2 TEM images of micro-scale of graphene oxide

slide glass의 경우 scanning electron microscope(SEM)을 통하여 단면을 관찰하고 surface profiler를 이용하여 두께 및 표면조도를 측정한다. 또한, UV-visible spectrophotometer를 통하여 가시광선 영역에서의 산화그래핀이 코팅된 기판의 투과도를 측정하여 투명도를 판단한다.

3. 결과 및 토의

3.1 산화그래핀 합성 및 특성평가

그래핀을 제조하는 방식 중 가장 쉽게 접근할 수 있는 방법은 스카치테이프를 이용한 박리법과 화학적 박리법을 포함하는 top-down 방식이다. 그 중에서 Hummers method를 이용한 화학적 박리법은 대면적의 그래핀을 대량생산 할 수 있는 가장 대표적인 접근방법 중의 하나이다. Hummers method를 통해 합성된 graphite oxide의 경우 층간에 산소작용기가 삽입되어 간단한 초음파 분쇄를 통해서 쉽게 graphene oxide로 박리가 가능할 뿐만 아니라 반복적인 초음파 분쇄와 원심분리를 통하여 산화그래핀의 크기별 분류가 가능하다.

그래핀의 산화된 형태인 산화그래핀의 경우, 표면의 산소 작용기의 존재로 인하여 친수성 특성을 띄고 있을 뿐만 아니라 수용액 상태에서 비교적 안정한 2차원 형태의 산화그래핀은 높은 투과도를 가지는 얇은 박막을 형성하기에 매우 좋은 재료이다. Fig. 2의 투과전자현미경(TEM) 사진에서 볼 수 있듯이, 마이크로미터 크기의 산화그래핀을 제조하여 코팅 효율을 높이고 나노수준의 두께를 갖는 박막 형성이 가능해진다. 합성된 산화그래핀의 FT-IR spectrum에서 1750 cm^{-1} 와 3400 cm^{-1} 에서 보이는 강한 peak는 각각 카르보닐

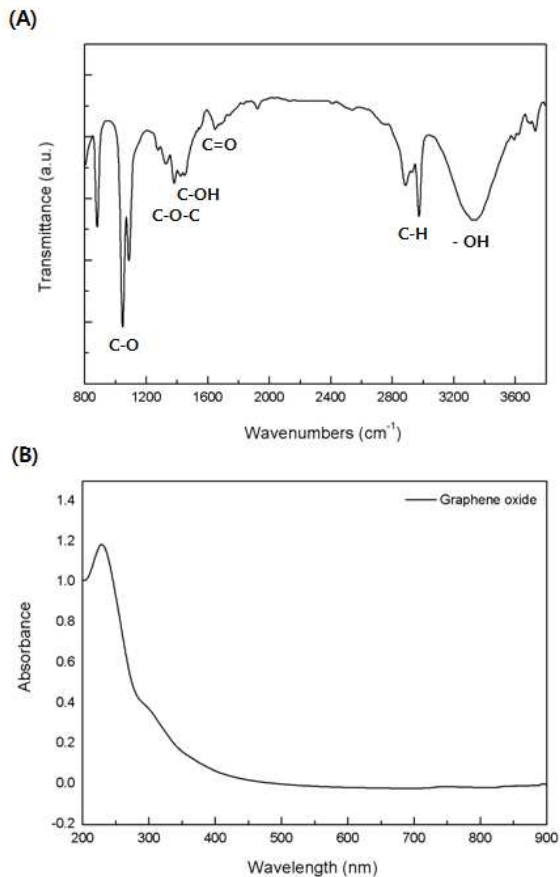


Fig. 3 Analysis of graphene oxide using (A) FT-IR and (B) UV-visible absorption spectra

그룹(C=O)과 수산화그룹(-OH)의 존재를 증명한다 (Fig. 3A).

또한, 산화그래핀 수용액의 UV-visible spectrum을 관찰해보면 산소관능기의 존재로 인해 그래핀의 특징적인 구조인 sp^2 결합이 끊어지면서 230nm와 300nm에서 강한 흡수 peak가 형성되었음을 확인하였다(Fig. 3B).

3.2 산화그래핀을 이용한 대면적 코팅

산화그래핀 시트를 기관에 도포하여 박막을 형성시키기 전에 모재의 전처리 과정이 필수적이다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 acetone, ethanol piranha solution을 이용하여 순차적으로 세척하여 표면에 존재할 수 있는 유기물을 제거하고 slide glass 표면을 보다 hydrophilic하게 처리해준다.

APTES을 이용한 silanization 과정을 통해 glass 표면을 amine(-NH₂) reactive하게 처리해주면 모재와 물질간의 접합력을 증가시킬 수 있다.⁽⁹⁾ Piranha solution에 의해 glass 표면에 수산화기(-OH)가 도

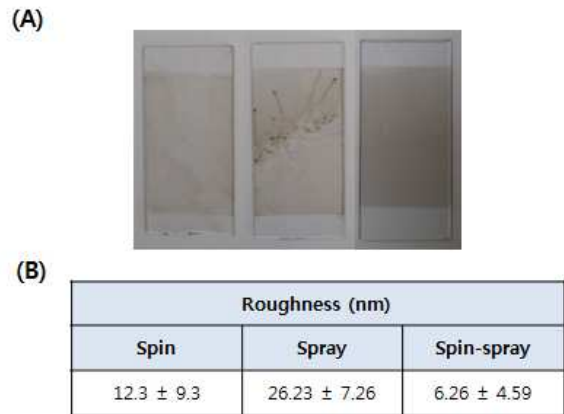


Fig. 4 Comparison of coating methods. (A) photographs of graphene oxide-coated substrates (Left image: spin-coating, Center image: spray coating, Right image: spin-spray coating), (B) Roughness of graphene oxide coating films using three different methods by profilometer

입되면 APTES가 더 효과적으로 자가조립되어 glass 표면에 반응할 수 있는 amine 말단기로 기능화되기 때문에 glass 표면과 산화그래핀 간의 결합력을 증가시켜 줄 수 있다. APTES를 이용하여 silanization하는 방법에는 여러가지가 있는데 대표적으로 증기증착법, 유기용매를 이용한 증착법, 그리고 수용액 상태에서의 증착법으로 나눌 수 있다. 반응할 수 있는 아민말단기를 증가시키기 위해 유기용매를 이용하여 silanization을 실시하였다.

그래핀을 이용하여 투명한 박막을 형성하기 위해서는 CVD 방식에 제한되어있기 때문에 대면적의 필름을 제조하는데 많은 어려움이 있다.

반면에 산화 그래핀 용액을 이용한 습식코팅의 경우 비교적 저렴한 비용으로 대면적의 코팅이 가능해진다. 습식코팅공정을 이용하여 균일한 산화그래핀 박막을 형성하기 위해서는 산화그래핀 용액의 분산도를 높게 유지시키는 것이 무엇보다 중요하다. 대면적의 산화 그래핀을 생산하기 위하여 graphite oxide를 초음파 분쇄로 증류수에 분산시킨 후 원심분리를 통하여 상층액을 제거한 다음 휘발성 유기용매인 에탄올을 이용하여 다시 한번 초음파 분쇄를 실시하게 된다.⁽¹⁰⁾ 증류수의 비율이 증가할수록 코팅단면에 물에 의한 얼룩지는 현상이 빈번하게 발생하므로 에탄올과 증류수의 비율을 9:1로 분산용액의 농도를 조절하여 높은 균일도를 갖는 박막을 형성시키도록 하였다. 산화그래핀을 이용한 습식코팅의 경우 용액캐스

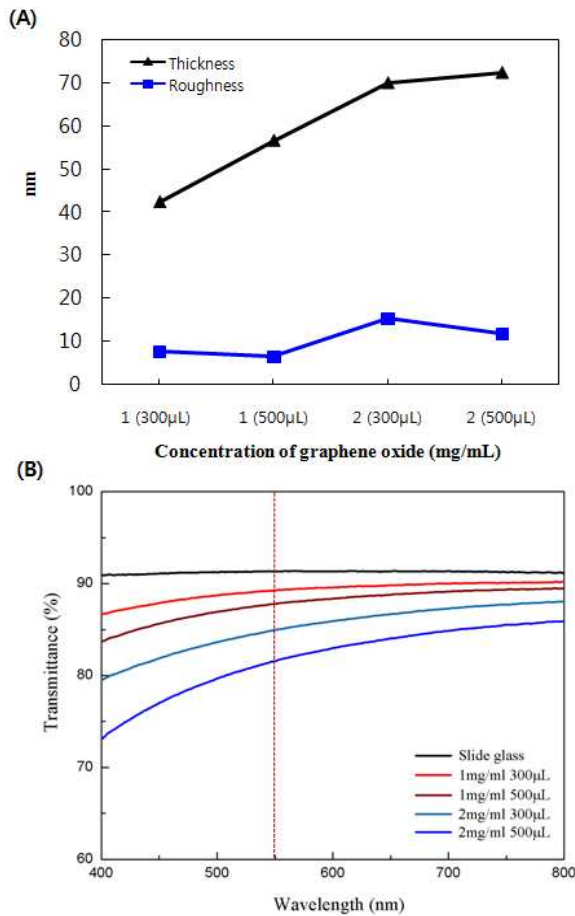


Fig. 5 Analysis of graphene oxide coating film. (A) Thickness profile of graphene oxide coating film, (B) UV transmittance spectra

팅, 스프레이 코팅, 스핀코팅, 그리고 전기영동 등의 다양한 방식으로 코팅이 이루어지고 있다.

그 중에서 가장 손쉽게 적용할 수 있는 스핀코팅과 스프레이를 이용한 코팅방식을 이용하여 실험을 실시하였다(Fig. 4). 스핀코팅은 가장 범용적으로 사용되는 코팅방법으로 기판 위에 용액을 도포 한 후, 기판을 일정한 rpm으로 회전시켜 원심력에 의해 막을 형성시키도록 하는 코팅방법이다. 이는 기판의 회전속도, 용액의 점도 및 휘발성, 확산도, 용액의 농도 및 양, 그리고 시간 등에 의해 코팅두께와 조도를 조절할 수 있게 된다. 소량의 용액으로도 코팅이 가능하기 때문에 경제적이지만 코팅모재의 형태에 제약이 있고 각진 형태의 기판의 경우 모서리 부분이 깔끔하지 못하다는 단점이 있다. 반면 스프레이 코팅의 경우 spray gun의 노즐을 통하여 용액을 분사시키는 방식이기 때문에 기판의 제약이 없으므로 다양한 모재에 코팅이 가능하다. 하지만 용액소모량이

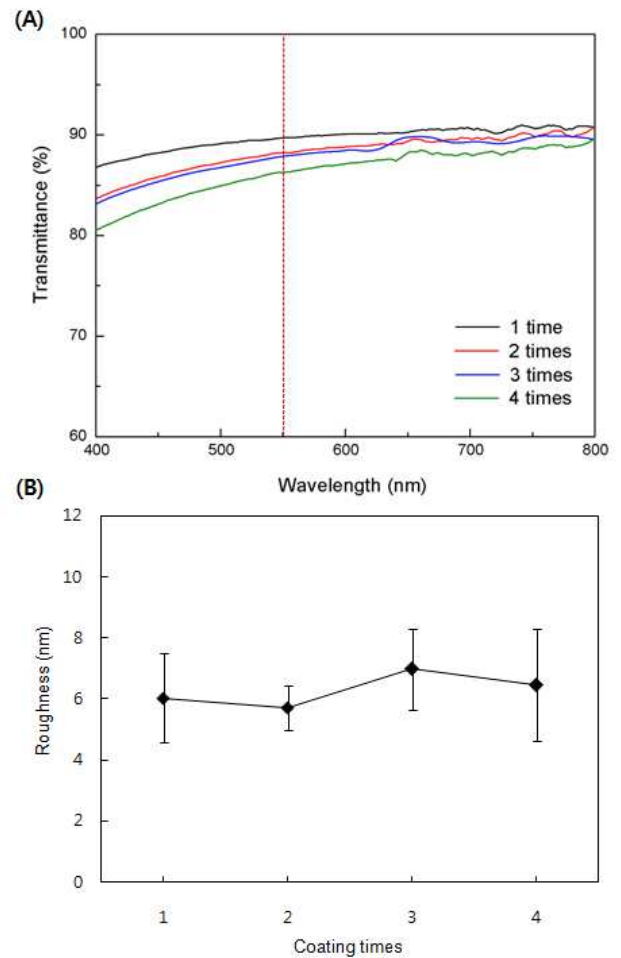


Fig. 6 Analysis of properties of multiple-stacked graphene oxide coating film. (A) UV transmittance spectra, (B) roughness profile of graphene oxide coating films

많을 뿐만 아니라 분사과정에서 액적이 형성되는 문제점이 발생하였다. 이를 해결하고자 스핀코터 위에 spray gun을 장착하여 두 가지 코팅방식을 동시에 수행하였다. 이는 각각의 방식의 장점을 그대로 취할 수 있을 뿐만 아니라 단점을 상호보완 할 수 있기 때문에 효과적인 박막코팅방법이다. Fig. 4B를 보면 각각 스핀코팅, 스프레이 코팅, 그리고 스핀-스프레이 코팅방식으로 코팅하였을 때 표면조도를 관찰한 결과, 스핀코팅과 스프레이 코팅을 이용하여 형성된 박막의 표면조도는 각각 12.3nm, 26.3nm이고 두 가지 코팅방식을 모두 이용한 스핀-스프레이 코팅방식의 박막의 표면조도는 6.26nm으로 가장 높은 균일도를 보였다. 스핀-스프레이 공법의 가장 큰 장점은 반복코팅이 용이하기 때문에 산화그래핀의 적층코팅이 가능해지므로 산화그래핀의 적층횟수를 조절하여

두께와 표면조도 및 투과도를 조절할 수 있다는 점이다.

3.3 산화그래핀 박막 분석

스핀-스프레이 공법을 이용하여 다양한 실험조건에서 실험을 실시하였다. 산화그래핀 용액의 농도를 달리하여 코팅을 실시하면, 산화그래핀의 농도와 양이 증가할수록 박막의 두께가 증가하였으나 투과도는 감소하는 것으로 관찰되었다 (Fig. 5). 1mg/mL 농도의 산화그래핀의 경우 용액의 양이 300 μ L일 때 두께가 42.3nm이고 500 μ L일 때 56.6nm로 측정되었다. 또한, 2mg/mL 농도에서는 300 μ L와 500 μ L의 양으로 코팅하였을 때 각각 70nm, 72.4nm의 두께를 갖으며 두 농도 모두 코팅용액의 양이 증가할수록 두께가 증가하는 추세를 보였다. 하지만 표면조도의 경우, 1mg/mL의 농도보다 2mg/mL의 농도에서 더 높게 측정되었다. 이는 1mg/mL의 저농도에서 산화그래핀의 분산도가 높기 때문에 더 균일한 코팅이 이루어졌음을 알 수 있다. 반면에 코팅 용액의 양을 달리하여 코팅하게 될 경우, 300 μ L보다 500 μ L에서 훨씬 더 균일한 코팅이 이루어졌는데, 스핀-스프레이법을 이용하여 균일하게 대면적 코팅을 하기 위해서는 최소 500 μ L는 필요로 한다는 것을 확인하였다. 가시광선 영역인 550nm에서 산화그래핀이 코팅된 기판의 투과도를 분석해보면 농도와 코팅용액의 양이 증가할수록 투과도는 감소하는 경향을 뚜렷하게 볼 수 있었다. 가시광선 영역인 550nm에서 88%이상의 투과도를 만족하는 농도인 1mg/ml의 산화그래핀 용액을 이용하여 각각 1회부터 4회까지 적층코팅을 실시하였을 때 4번의 반복코팅에도 86%이상의 투과도를 유지하는 것을 볼 수 있었다(Fig. 6A). 반면 적층횟수가 증가할수록 두께는 증가하였지만 표면조도의 경우 5.7~6.9nm로 모두 일정수준을 유지하는 것을 관찰할 수 있었다(Fig. 6B). 이는 반복코팅 횟수에 상관없이 스핀-스프레이 공법이 높은 균일도 수준을 유지하기 때문이다. Fig. 7의 적층횟수 증가에 따른 산화그래핀 코팅단면을 SEM을 통하여 관찰한 결과, 1회 코팅시에도 대면적의 균일한 코팅이 이루어졌음을 관찰하였고 코팅된 형태를 자세히 살펴보면 여러 겹의 산화그래핀 시트가 적층되어 포개진 형태가 주름의 형상처럼 관찰되었다. 이는 TEM상에서 관찰된 산화그래핀의 형태와 비슷한 형태를 취하는 것을 볼 수 있었다.

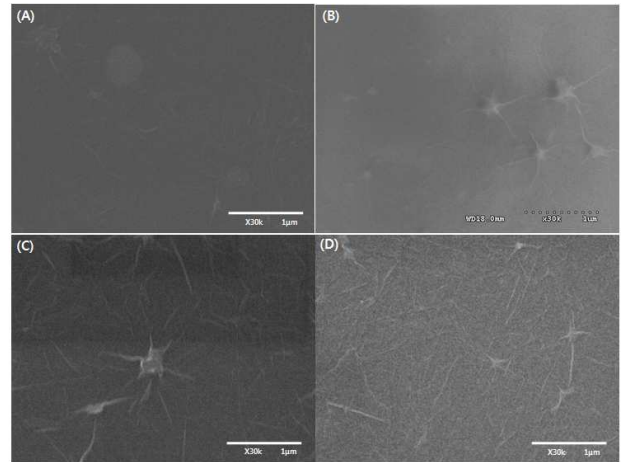


Fig. 7 SEM images of graphene oxide coating films using the spin-spray method: (A) Single layer coating, (B) Two-layer stacked coating, (C) Three-layer stacked coating, and (D) Four-layer stacked coating

4. 결 론

Hummers method를 이용하여 산화그래핀을 합성하고 스핀-스프레이 코팅기술을 개발하였다. 스핀과 스프레이 공정을 동시에 이용하여 합성된 산화그래핀을 amine-functional group으로 표면개질을 한 유리 기판에 균일하게 박막코팅을 하였다. 산화그래핀 박막을 스핀-스프레이 공정을 이용하여 유리기판에 균일하게 4층까지 적층을 하였고 86% 이상의 투명도를 확보하였다. 그리하여, 합성된 산화그래핀 박막소재의 스핀-스프레이 코팅 기술은 다양한 전자제품들의 display를 대면적으로 코팅할 수 있을 것으로 기대되어진다.

후 기

이 연구는 LG전자 산학파제 지원으로 수행되었습니다 (과제번호: C2014018812).

참고문헌 (References)

- (1) Jeong, J. -I. and Yang, J. -H., 2011, "Trend and Prospect of Thin Film Processing Technology," *Journal of the Korean Magnetics Society*, Vol. 21, No. 5, pp. 185~192.
- (2) Geim, A. K. and Novoselov, K. S., 2007, "The Rise of Graphene," *Nature*, Vol. 6, pp. 183~191.
- (3) Geim, A. K., 2009, "Graphene: Status and Prospects," *Science*, Vol. 324, No. 5934, pp.

- 1530~153.
- (4) Dong, X., Su, C. -Y., Zhang, W., Zhao, J., Ling, Q., Huang, W., Chen, P. and Li, L. -J., 2010, "Ultra-large Single-layer Graphene Obtained From Solution Chemical Reduction and Its Electrical Properties," *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol. 12, pp. 2164~2169.
- (5) Becerril, H. A., Mao, J., Liu, Z., Stoltenberg, R. M., Bao, Z. and Chen, Y., 2008, "Evaluation of Solution-Processed Reduced Graphene Oxide Films as Transparent Conductors," *ACS Nano*, Vol. 2, No. 3, pp. 463~470.
- (6) Pham, V. H., Cuong, T. V., Hur, S. H., Shin, E. W., Kim, J. S., Chung, J. S. and Kim, E. J., 2010, "Fast and Simple Fabrication of A Large Transparent Chemically-converted Graphene Film by Spray-coating," *Carbon*, Vol. 48, No. 7, pp. 1945~1951.
- (7) Liang, H., Bu, Y., Zhang, J., Cao, Z. and Liang, A., 2013, "Graphene Oxide Film as Solid Lubricant," *ACS Applied Materials & Interfaces*, Vol. 5, No. 13, pp. 6369~6375.
- (8) Hummers Jr., W. S. and Offeman, R. E., 1958, "Preparation of Graphitic Oxide," *Journal of the American Chemical Society*, Vol. 80, No. 6, pp. 1339~1339.
- (9) Wang, W. and Vaughn, M. W., 2008, "Morphology and Amine Accessibility of (3-Aminopropyl) Triethoxysilane Films on Glass Surfaces," *Scanning*, Vol. 30, No. 2, pp. 65~77.
- (10) Paredes, J. I., Villar-Rodil, S., Martinez-Alonso, A. and Tasco'n, J. M. D., 2008, "Graphene Oxide Dispersions in Organic Solvents," *Langmuir*, Vol. 24, No. 19, pp. 10560~10564.