

## 상변화물질을 이용한 PMMA 복합필름의 방열 성능 향상에 관한 연구

권준혁\* · 윤범용\* · 조승현\*\* · Stephanie K. Lee\*\* · 김형익\*\*\* · 김동현\*\*\*\* ·  
박경의\*\*\*\* · 서종환\*\*\*\*\*†

### A Study on Heat Dissipation Characteristics of PMMA Composite Films with Phase Change Material

Junhyuk Kwon\*, Bumyong Yoon\*, Seung-hyun Cho\*\*, Stephanie K. Lee\*\*, Hyung-ick Kim\*\*\*,  
Donghyun Kim\*\*\*\*, Kyungui Park\*\*\*\*, Jonghwan Suhr\*\*\*\*\*†

**ABSTRACT:** The focus of this study is to experimentally investigate the heat dissipation characteristics of poly (methyl methacrylate) (PMMA) composite films with phase change materials (PCM) to resolve heat build-up problems encountered in various electronic devices. In this study, two different types of phase change materials were used to fabricate the composite films by compression molding method and PCM paste sealing method then compared. It was observed in this study that the heat dissipation capability of PCM/PMMA composite films was remarkably enhanced by applying graphite sheet or graphene film into the composite due to their high thermal conductivity. These PCM/PMMA composite films were attached on the hot spot inside smart phone and tested its surface temperature change according to time. The heat dissipation capability of PCM/PMMA composite film incorporated smart phone was increased 154% and hybrid PCM/PMMA composite film incorporated smart phone was increased 286% over the reference, respectively.

**초 록:** 본 연구에서는 전자기기 사용에 이슈가 되고 있는 발열 문제를 해결하고자 상변화물질(PCM)의 잠열 특성을 이용하여 폴리메틸메타크릴레이트(PMMA) 복합필름을 제조하고 방열 성능을 평가하였다. 이를 위해 용융 온도가 서로 다른 두 가지의 상변화물질을 사용하여 제작한 PCM/PMMA 복합필름의 열적 특성을 비교 분석하여 다양한 사용조건에 따른 유효성을 검증하였고, Compression Molding 방법과 PCM Paste Sealing 방법에 따른 PCM/PMMA 복합필름의 방열 특성을 비교 분석하여 최대의 방열 효과를 달성할 수 있는 최적의 방법을 도출하였다. 또한 PCM/PMMA 복합필름의 방열 성능을 최대화하기 위해 열전도율이 높은 흑연과 그래핀을 추가로 적층하여 제조한 Hybrid 복합필름의 열적 특성을 분석하였고, 이들을 통해 향상된 방열 성능을 실험적으로 검증하였다. 본 연구를 통해 개발된 방열 성능이 우수한 복합필름은 다양한 전자기기에 활용되어 발열 문제를 효과적으로 해결할 수 있을 것으로 기대된다.

**Key Words:** 상변화물질(Phase change material), 방열(Heat dissipation), 폴리메틸메타크릴레이트 복합필름(PMMA Composite Film), 흑연(Graphite), 그래핀(Graphene)

Received 7 August 2017, received in revised form 23 October 2017, accepted 29 October 2017

\*Department of Polymer Science and Engineering, Sungkyunkwan University

\*\*Department of Energy Science, Sungkyunkwan University

\*\*\*Korean Institute of Industrial Technology

\*\*\*\*LG Electronics

\*\*\*\*\*Department of Mechanical Engineering, Sungkyunkwan University

†Corresponding author (E-mail: suhr@skku.edu)

## 1. 서 론

전자기기가 소형화 및 경박화 됨에 따라 발열밀도 증가에 따른 제품의 신뢰성, 효율성, 안정성이 저하되며 이는 소비자 만족도에 직접적인 악영향을 초래하고 있다. 현재까지는 전자기기의 발열문제를 해결하기 위해 히트 싱크(Heat Sink), 팬(Fan) 그리고 흑연 시트(Graphite Sheet) 등을 활용하여 내부에서 발생한 열을 외부로 빠르게 방출하려는 시도가 있지만 이는 발생한 열을 그대로 외부로 방출함에 따라 사용자가 불편함을 느끼는 단점이 있어 근본적인 발열 문제의 해결책이 되지 못하는 실정이다[1]. 따라서 열 저장 체계를 통해 기기에서 발생하는 열을 단순한 방출만이 아닌 발열량의 소비와 방출의 융합으로 해결하는 연구의 필요성이 대두되고 있다[2]. 현재 각광받고 있는 주요 에너지 저장 기술인 열 저장 체계는 주된 에너지원으로 현열(Sensible Heat), 잠열(Latent Heat) 그리고 열 화학 반응열(Thermochemical Heat)을 사용하며 그 중에서도 높은 에너지 저장 밀도를 가지며 에너지 저장-방출의 온도 분포가 좁은 잠열 방식의 열 저장 체계가 가장 주목 받고 있다[3,4]. 잠열이란 물질의 상변화 과정 중에 흡수되거나 방출되는 열에너지를 의미하며, 이렇게 상변화 과정을 거치며 열에너지를 이용하는 물질을 상변화물질(Phase Change Material, PCM)이라고 한다. PCM은 좁은 온도분포에서 매우 높은 밀도의 열에너지를 저장할 수 있어 이를 활용한 다양한 연구개발이 활발하게 진행되고 있다[5]. PCM을 실제 축열 시스템에 적용하여 효율적인 성능을 구현하기 위해서는 단위 부피 및 단위 무게당 축열 용량이 커야 하며 PCM 자체의 비열 및 열전도율 값이 커야 한다. 이는 저장된 열의 방출 과정에서 열전달이 발생하는 표면에 붙어있는 물질의 열전도율이 방열 성능에 영향을 미치기 때문이다. 또 다른 요구 특성으로 낮은 부식성을 가져야 하고 일정한 온도에서 상변화가 이루어져 밀도차이로 인한 상 분리 현상을 방지하여야 한다[6]. 이러한 요구 특성을 만족하는 PCM으로서 유기혼합물인 Paraffin이 높은 잠열량 및 화학안정성으로 인해 각광을 받고 있지만 용융될 경우 누출의 위험이 있어 열 저장체계 적용을 위한 복합재료 기술이 필수적이다[3,6,7].

따라서 본 연구에서는 전자기기에 적용되어 누출의 문제없이 최대의 방열성능을 구현하는 복합재료 개발을 위해 PCM/PMMA 복합필름을 Compression Molding과 PCM Paste Sealing의 두 방법으로 제조하여 방열성능을 비교 분석하였다. 누출을 막기 위해 Paraffin 입자들이 마이크로 캡슐화 된 MPCM(Microencapsulated PCM)을 사용하였고 MPCM 입자들을 고분자에 분산시킨 복합필름을 제조하여 고분자를 지지체로 활용하면서 누출을 방지하도록 했다. 또한 Paraffin과 고분자의 낮은 열전도율을 극복하기 위해 흑연과 Thermal-chemical Vapor Deposition(T-CVD) 공정으로 합성한 그래핀을 이용하여 Hybrid PCM/PMMA 복

합필름을 제작하여 높은 열전도율을 통해 열 방출량을 향상시키고 복합재료 구조에 따른 방열성능의 영향을 고찰하였다.

## 2. 실험 및 방법

### 2.1 재료

PCM/PMMA 복합필름 제조에 사용된 PCM(상변화물질)은 Paraffin이 실리카 보강 복합재료로 마이크로 캡슐화된 것으로 Microtek社에서 제공받았다. PCM의 재료 물성은 Table 1에 나타내었다. 복합필름 제조를 위한 SEJIN TS社의 30  $\mu\text{m}$  두께의 PMMA 필름을 사용하였다. Hybrid PCM/PMMA 복합필름 제조에 사용된 흑연은 80  $\mu\text{m}$  두께의 점착성이 부여된 시트로 LG 전자로부터 제공받았으며, 그래핀은 0.2 nm 두께의 필름으로 Thermal-chemical Vapor Deposition(T-CVD) 공정으로 합성하였다.

### 2.2 T-CVD 그래핀 합성

그래핀 합성 과정은 Fig. 1에 나타내었다. 먼저 Copper Sheet를 T-CVD 장비의 Quartz 실린더 내부에 수평으로 놓은 뒤 1000°C의 수소기체( $\text{H}_2$ )와 메탄기체( $\text{CH}_4$ )를 일정 시간 동안 주입한다. 이 과정에서 고온의 탄소원자가 Copper Sheet 표면에 증착되면서 2차원 육각형 고리 모양의 단일 층 그래핀이 형성된다. 이 후 약 3시간 동안 Quartz 실린더를 빠르게 냉각하여 합성을 종료한 후 클로로벤젠

Table 1. Material properties of provided PCM

Capsule Composition	PCM: 85-90 wt% Composite Shell: 10-15 wt%
Core Material	Paraffin
Particle Size	17-20 $\mu\text{m}$
Melting Temperature	37°C (for PCM 37D) 43°C (for PCM 43D)
Heat of Fusion	190-200 J/g
Specific Gravity	0.9

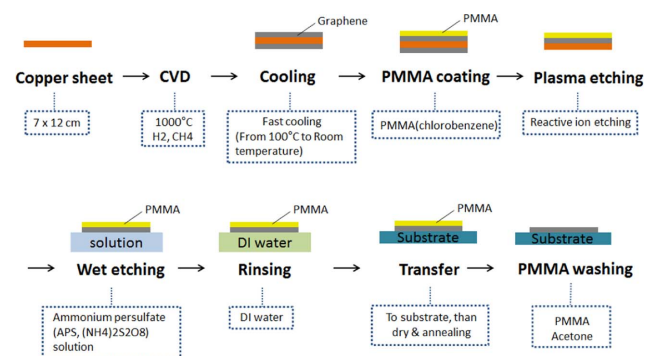


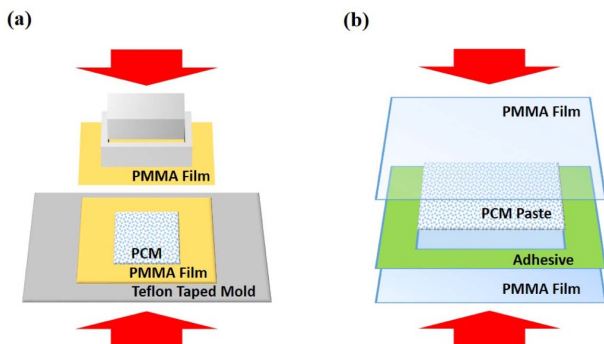
Fig. 1. Schematic of T-CVD process for graphene film fabrication

(Chlorobenzene)에 용해된 PMMA를 Graphene/Copper Sheet의 그래핀 층 위에 Spin coating하여 그래핀을 외부환경으로부터 보호한다. 이 후 Plasma Etching을 통해 Copper Sheet 밑에 불안정하게 합성된 그래핀을 제거한다. Etching이 끝난 Graphene/Copper Sheet를 과황산암모늄(Ammonium Persulfate) 용매에 넣어 Copper Sheet를 용해시킨 뒤 남은 그래핀 필름을 증류수로 세척함으로써 Hybrid PCM/PMMA 복합필름 제조에 사용된 그래핀을 합성하였다.

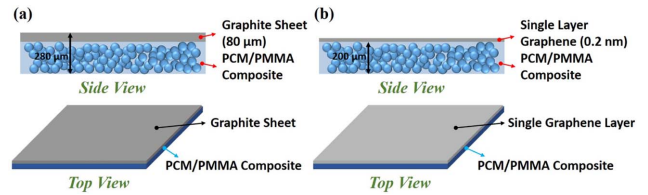
### 2.3 PCM/PMMA 복합필름 제조

본 연구에서는 Compression Molding 방법과 PCM Paste Sealing 방법을 통해 PCM/PMMA 복합필름을 제조하였고, 두 방법에 따라 제조한 복합재료의 방열성능을 비교 분석함으로써 최적 성능 구현을 위한 제조 방법을 도출하였다. Compression Molding 방법은 열과 압력을 가하여 PCM 입자를 PMMA 필름으로 Sealing 하는 공정으로 Fig. 2(a)에 도식으로 나타내었다. 먼저 핫프레스 위에 놓여진 초경 합금 판을 특정 온도로 맞춘 후 PMMA 필름 위에 PCM 입자를 고르게 분산시키고 PMMA 필름을 한 장 덧댄다. 그리고 Female Mold를 이용하여 열과 압력을 가한 뒤 PMMA 필름 간 접착이 이루어지도록 하여 PCM 입자가 밖으로 누출되지 않도록 1차 Sealing 한다. 그 다음 PCM 입자들의 유동성을 최소화하기 위해 Male Mold로 PCM이 분산된 부분에 열과 압력을 가하여 압축함으로써 PCM/PMMA 복합필름을 제조한다. 이 방법을 통해 제조된 복합재료는 내부에 PCM 함량을 최대 100 wt%까지 구현할 수 있어 복합재료 질량 대비 최대의 방열성능을 기대할 수 있는 장점이 있다.

PCM Paste Sealing 방법은 PCM Paste를 제작하여 PMMA 필름에 Sealing 하는 방법으로 Fig. 2(b)에 도식으로 나타내었다. 먼저 PCM 입자를 Binder에 분산시켜 PCM Paste를 제작하는데, PCM의 함량이 적어질수록 복합재료의 방열성능이 감소하므로 최소한의 Binder를 사용하고 Paraffin 계열의 Binder를 사용하여 방열성능 감소를 최소화하였다. PCM Paste는 Paraffin Binder를 용융시킨 후 PCM 입자를 일정량



**Fig. 2.** Schematic of PCM/PMMA composite film fabrication method; (a) Compression molding and (b) PCM paste sealing methods



**Fig. 3.** Schematic of hybrid PCM/PMMA composite film; (a) Using an 80  $\mu\text{m}$  graphite sheet and (b) using a 0.2 nm graphene film

첨가한 후 기계적인 혼합을 통해 분산시켜 제조하였다. Bar Coater를 이용하여 PCM Paste를 PMMA 필름 위에 일정 두께로 도포한 뒤 압력을 가하여 Sealing 한다. 이를 통해 만들어진 PCM Paste/PMMA 복합필름은 Binder를 통해 PCM 입자의 유동성을 제한하여 형상안정성이 우수하며 열 공정이 필요하지 않아 공정의 간소화를 이루는 장점이 있다. 본 실험에서 Compression Molding 방법으로 제작한 복합재료 필름은 100 wt% PCM을 첨가하였고, PCM Paste Sealing 방법으로 제작한 복합재료 필름은 25 wt%, 30 wt% PCM을 첨가하였다.

### 2.4 Hybrid PCM/PMMA 복합필름 제조

본 연구에서는 PCM/PMMA 복합필름의 방열 성능을 최대화하기 위해 흑연과 그래핀(Graphene)을 도입한 Hybrid 복합필름의 방열 성능을 비교 분석하였다. 열전도율이 높은 탄소계 물질은 필름의 열전도율을 향상시켜 효과적으로 열을 외부로 방출시킴으로써 PCM의 상변화 시간을 증가시키고 방열 성능을 향상시킬 것으로 예상하였다. 이를 위해 제조한 Hybrid PCM/PMMA 복합필름의 제조방법은 Fig. 3에 나타내었다. 앞서 제조한 PCM/PMMA 복합필름 위에 80  $\mu\text{m}$  두께의 흑연 시트 혹은 T-CVD를 통해 합성한 0.2 nm 두께의 그래핀 필름을 적층하여 Hybrid PCM/PMMA 복합필름을 제조하였다.

### 2.5 방열 성능 평가

복합재료 필름 샘플의 방열 성능 평가를 위해 Thermocouple를 사용하여 특정 열원 위에서 샘플 표면의 시간에 따른 온도 변화를 측정하였다. 승온 과정에서의 표면 온도 변화 측정 방법은 Fig. 4(a)에 나타내었으며 순서는 다음과 같다. 먼저 열원으로 사용되는 Hot-plate의 온도를 52°C로 설정한 후 표면의 온도를 측정하기 위해 Thermocouple의 4개 Channel 중 1개는 열원 위에, 나머지 3개는 샘플 위에 고정한다. 그리고 샘플이 열원 위에 올려진 후부터 시간에 따른 표면 온도 변화를 관측한다. 또한 PCM이 용융된 후 다시 냉각할 때 나타나는 결정화 과정을 통해 방열 성능을 비교 분석하였다. 냉각 과정에서의 표면 온도 변화 측정 방법은 Fig. 4(b)에 나타내었고 그 과정은 다음과 같다. 항온조를 사용하여 측정 공간 내부의 온도를 일정하게 유지하고 얇은 유리 판



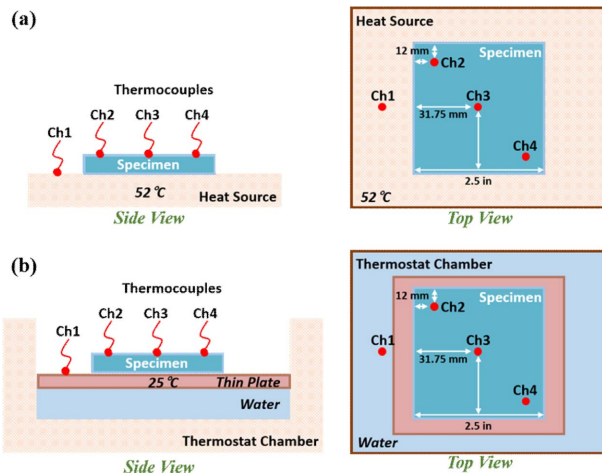


Fig. 4. Schematic of heat dissipation capability test; (a) On heating condition and (b) on cooling condition

의 온도를 25°C로 설정한다. 표면의 온도를 측정하기 위해 Thermocouple의 Channel 1개는 샘플이 올라갈 유리 판 위에, 나머지 3개는 높은 온도의 샘플 위에 고정한다. 그리고 높은 온도의 샘플이 유리판 위에 올려진 후부터 시간에 따른 표면 온도 변화를 관측한다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 PCM 형상 및 열적 특성 분석

본 연구에서는 특정 온도에서 주변 환경으로부터 열을 흡수 혹은 방출하는 PCM의 특성에 따라 서로 다른 상변화 온도를 가지는 PCM을 선정하여 비교 분석함으로써 PCM/PMMA 복합필름의 활용성을 높이하고자 하였다. 37°C 부근에서 용융점을 가지는 PCM 37D와 43°C 부근에서 용융점을 가지는 PCM 43D를 선정하여 동일 열원에서의 방열 거동을 분석하였다. 먼저 PCM의 열적 특성을 분석하기에 앞서 SEM(Scanning Electron Microscopy) 이미지를 통해 입자 크기 및 형상을 분석하였다. 그 결과, 두 가지 PCM 모두 구형의 형상을 가지며 평균 직경 19  $\mu\text{m}$ 의 크기로 캡슐화되어 있는 것을 확인하였다. Fig. 5(a)에 나타난 PCM 37D의 DSC(Differential Scanning Calorimetry) 곡선에서 흡열 피크의 면적은 185 J/g으로 계산되어 승온 시 이에 해당하는 잠열량을 가지는 것을 알 수 있으며, 피크의 최대값이 33.4°C에서 나타나므로 이 온도를 PCM 37D의 용융점( $T_m$ )으로 결정하였다. PCM 37D의 냉각과정에서는 액체상태의 분자사슬들이 열에너지를 방출하면서 다시 규칙적인 배열을 형성하는 결정화 과정이 27.6°C 부근에서 일어나며 185 J/g의 잠열량만큼 발열하는 것을 확인하였다. 또한 반복되는 가열-냉각 과정에서 흡열 및 발열량의 차이가 일정하게 유지되는 것으로부터 PCM 37D의 상변화 재현성이 우수한 것을 확인하였다. Fig. 5(b)에서는 같은 실험조건으로 수행된

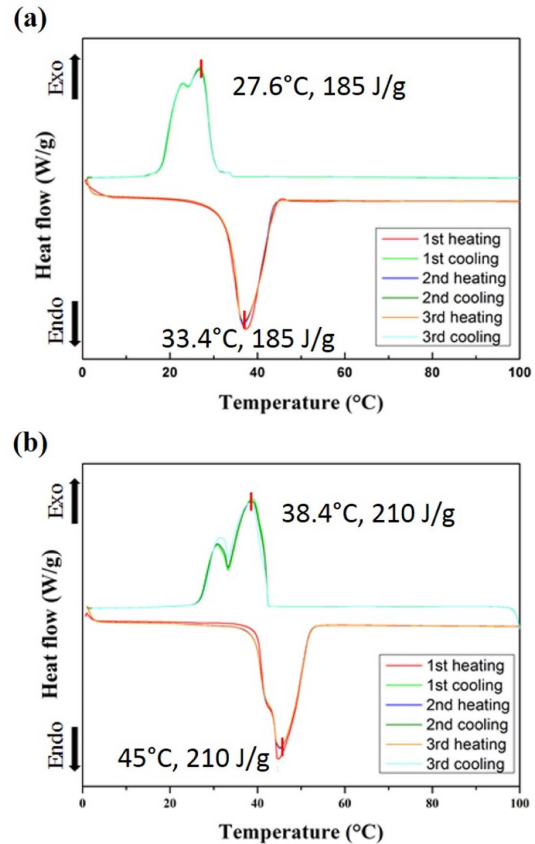


Fig. 5. DSC curves of (a) PCM 37D and (b) PCM 43D

PCM 43D의 DSC 곡선을 나타내었다. 분석 결과, PCM 43D는 45°C 부근에서 용융점을 나타내며 210 J/g의 잠열량을 가지는 것을 확인하였다. 결정화 온도는 38.4°C이며, 잠열량 역시 210 J/g의 동일한 양을 보였다. PCM 37D와 마찬가지로 반복되는 가열-냉각 과정에서의 상변화 재현성이 우수한 것을 확인하였다. TGA 분석을 통해 PCM 37D, PCM 43D의 열분해온도를 참고하여 가공 온도를 설정하였다. 두 PCM 모두 약 150°C 부근에서 열분해가 시작되는 것을 확인하였고, 이에 따라 최종 복합재료의 잠열량 손실을 최소화 하기 위해 가공 온도조건을 초기 열분해온도 시작점인 150°C 이하로 설정하였다.

#### 3.2 Paraffin Binder의 열적 특성 분석

PCM Paste Sealing 방법으로 제조한 복합재료의 방열 성능에 Paraffin Binder가 미치는 영향을 분석하기 위해 Paraffin Binder의 열적 특성을 Fig. 6에 나타난 DSC 곡선을 통해 확인하였다. Paraffin Binder는 15°C 부근에서부터 용융되기 시작하여 63°C까지 넓은 온도 범위에 걸쳐 1,320 J/g의 열에너지를 흡수한다. Paraffin Binder는 목표로 하는 상변화 온도를 포함하는 용융온도 범위를 가지므로 Binder의 사용으로 인한 방열성능 손실을 자체의 잠열량으로 일부 보상할 수 있음을 확인하였다.

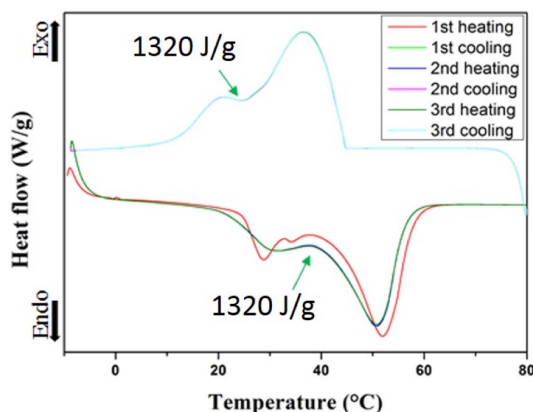


Fig. 6. DSC curves of paraffin binder

### 3.3 그래핀 형상 및 구조 분석

PCM의 낮은 열전도율을 극복하기 위한 Hybrid PCM/PMMA 복합필름 제조에 사용된 그래핀 필름의 형상 및 구조를 분석하기 위해 광학분석과 라만분석을 수행하였다. 먼저 T-CVD 공정으로 합성된 그래핀의 OM(Optical Microscope) 사진과 SEM 사진을 Fig. 7에 나타내었다. 광학 이미지를 통해 합성된 그래핀에 부분적으로 여러 층의 그래핀이 존재하는 것과 주름이 형성된 것을 확인할 수 있었다. 또한 그래핀을 외부 환경으로부터 보호하기 위해 코팅

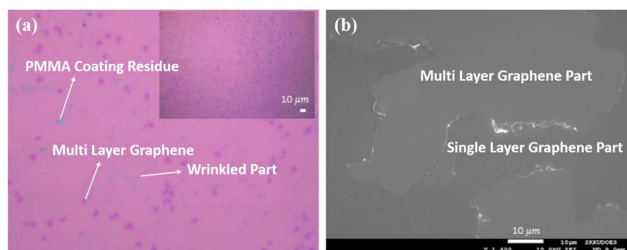


Fig. 7. (a) Optical image and (b) SEM image of graphene film

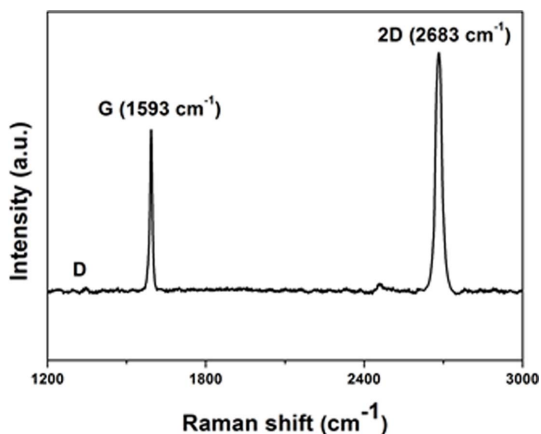


Fig. 8. Raman spectrum of synthesized graphene film on SiO<sub>2</sub>/Si substrate

한 PMMA 역시 완벽한 제거가 이루어지지 않아 부분적으로 잔여물이 남아있는 것을 확인하였다. Fig. 8에는 합성된 그래핀의 라만 스펙트럼을 나타내었다. 낮은 세기의 D Peak로부터 2차원 육각형 고리 모양의 탄소 구조 손상이 거의 없음을 유추하였다.

### 3.4 PCM/PMMA 복합필름 방열 성능 분석

Compression Molding 방법으로 PCM 37D를 사용하여 제작한 PCM 37D/PMMA 복합필름의 방열 성능을 평가하기 위해 52°C 열원 위에서 시간에 따른 표면 온도 거동을 분석

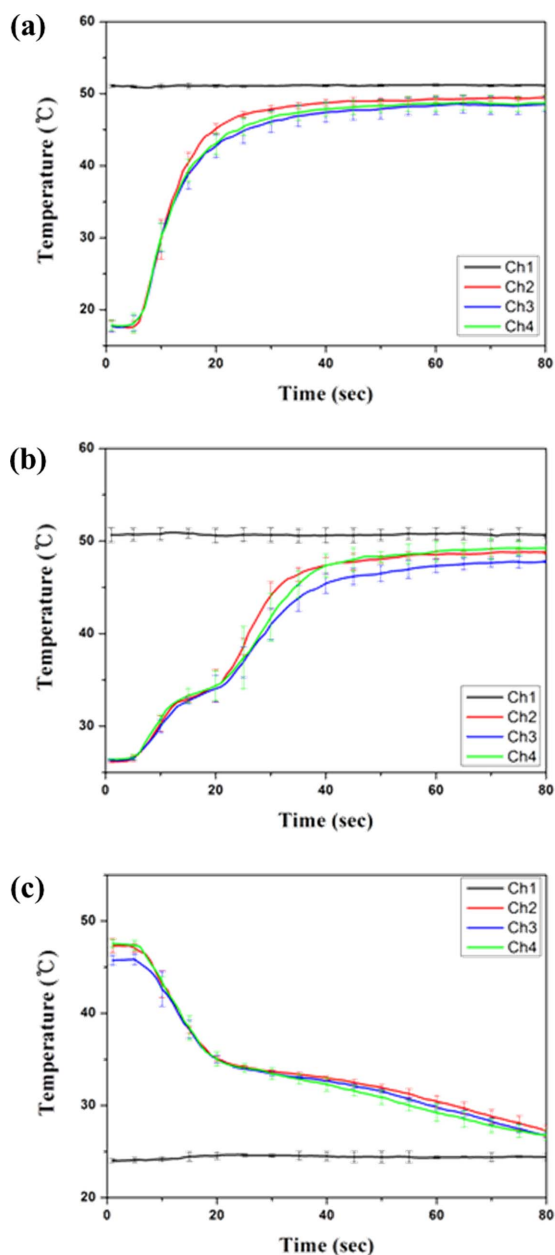


Fig. 9. Heating curves of (a) neat PMMA film and (b) PCM 37D/PMMA composite film, and (c) cooling curves of PCM 37D/PMMA composite film

하였다. 먼저 PCM을 사용한 복합필름의 방열 성능을 평가하기 위해 대조군으로 동일한 샘플 두께를 가지는 Neat PMMA 필름의 방열 성능을 평가하였다. Neat PMMA 필름의 유리전이온도는 97°C이므로 52°C의 열원 위에서 화학적 반응이 관찰되지 않았다. 따라서 Fig. 9(a)에 나타난 Neat PMMA 필름의 온도 상승 곡선에서는 샘플이 주변으로부터 열을 흡수하면서 나타나는 상변화 구간이 없으므로 방열 효과 없이 열원의 온도까지 지체 없이 상승함을 확인하였다. 이에 반해 PCM 37D를 함유한 PCM 37D/PMMA 복합필름은 Fig. 9(b)의 온도 상승 곡선에서 방열 성능이 확인되었다. 33°C 부근에서 상변화 구간이 나타났고, 9.400 sec 동안 발열이 지연되었다. 또한 냉각 과정에서 용융된 PCM이 다시 결정화 되면서 나타나는 상변화 구간을 통해 방열 성능을 분석하였다. Fig. 9(c)의 냉각 곡선을 통해 PCM 37D/PMMA 복합필름의 냉각 시 상변화 구간은 35°C 부근에서 6.441 sec로 관측되었다.

다음으로, 용융점이 PCM 37D와 다른 PCM 43D로 제작한 PCM 43D/PMMA 복합필름의 방열 성능을 측정하여 비교 분석 함으로써 Operating Temperature가 다른 PCM 사용에 따른 방열 성능 변화를 분석하였다. Fig. 10(a)에 나타난 온도 상승 곡선에 따르면 PCM 43D/PMMA 복합필름 샘플

은 40°C 부근에서 10.867 sec의 상변화 구간이 확인되었다. 본 시험을 통해 도출된 복합재료의 상변화 시간은 고체-액체 간 상변화에 필요한 흡열 혹은 발열 에너지 양에 비례하며 식 (1)의 관계를 가진다.

$$Q_m = m \cdot L \quad (1)$$

여기서  $Q_m$ 은 상변화에 필요한 에너지 양,  $m$ 은 물질의 질량 그리고  $L$ 은 물질의 잠열량을 나타낸다.

즉, PCM/PMMA 복합필름 안의 PCM 입자들이 용융되기 위해 필요한 흡열 에너지 양은 물질의 질량과 물질의 잠열량의 곱으로 표현되므로 PCM 복합재료의 방열 성능은 PCM의 질량과 잠열량에 정비례한다. 앞의 DSC 열 분석을 통해 도출한 PCM 37D와 PCM 43D의 잠열량을 바탕으로 계산하면 이론상 PCM 43D/PMMA 복합필름의 흡열 에너지 양( $Q_m$ )은 PCM 37D/PMMA 복합필름보다 13% 높아야 한다. 방열 성능 분석 결과 PCM 43D/PMMA 복합필름의 상변화 구간이 PCM 37D/PMMA 복합필름보다 15% 향상된 상변화 시간을 보이므로 본 실험 결과 값이 이론 값과 유사함을 확인하였다. Fig. 10(b)에 나타난 PCM 43D/PMMA 복합필름의 냉각 시험 결과 또한 40°C 부근에서 9.834 sec 동안 상변화를 보여 PCM 37D/PMMA 복합필름에 비해 방열 성능이 13% 향상된 것을 확인하였다.

PCM Paste Sealing 방법으로 제조한 PCM Paste/PMMA 복합필름은 Compression Molding 방법으로 동일한 용융점의 PCM을 사용하여 제작한 PCM/PMMA 복합필름과 마찬가지로 33°C 부근에서 상변화 구간이 관찰되었다. 25 wt%를 함유한 샘플은 7.791 sec의 상변화 시간을 보였고, 30 wt%를 함유한 샘플은 8.093 sec의 상변화 시간을 보여 PCM 함유량이 증가함에 따라 방열 성능이 향상된 것을 확인하였다. 또한 넓은 구간의 용융범위를 갖는 Paraffin Binder의 영향으로 PCM 37D의 상변화 구간을 제외한 온도 영역에서도 온도 상승 곡선의 기울기가 완만해진 것을 확인하였다. 이를 통해 PCM Paste Sealing 방법으로 제조한 복합재료 필름에서는 Paraffin Binder의 영향으로 온도 상승 속도는 일정 부분 감소하지만 PCM 함유량 제한으로 인해 발열을 효과적으로 지연시키지는 못한 반면 한정된 두께에서 상변화 물질을 100 wt% 첨가할 수 있는 Compression Molding 방법에서 최대의 방열 성능이 나타남을 알 수 있었다.

### 3.5 Hybrid PCM/PMMA 복합필름 방열 성능 평가

열전도율이 높은 흑연과 그래핀을 추가로 적층하여 제작한 Hybrid PCM/PMMA 복합필름의 방열 성능을 앞선 평가 방법과 동일하게 수행하여 복합재료 필름 열전도율에 따른 방열 성능 변화를 분석하였다. 높은 열전도율을 가진 물질의 외부 열 방출은 식 (2)의 Fourier 식으로 설명이 가능하다[8,9].

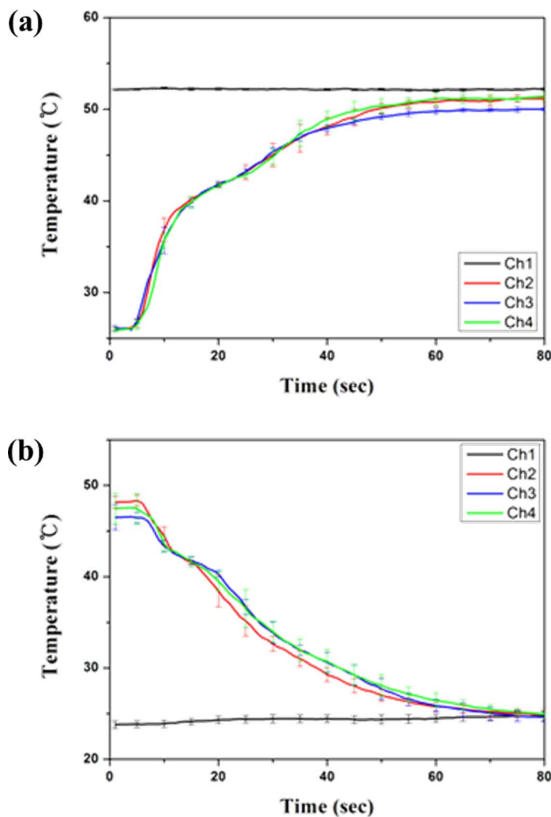
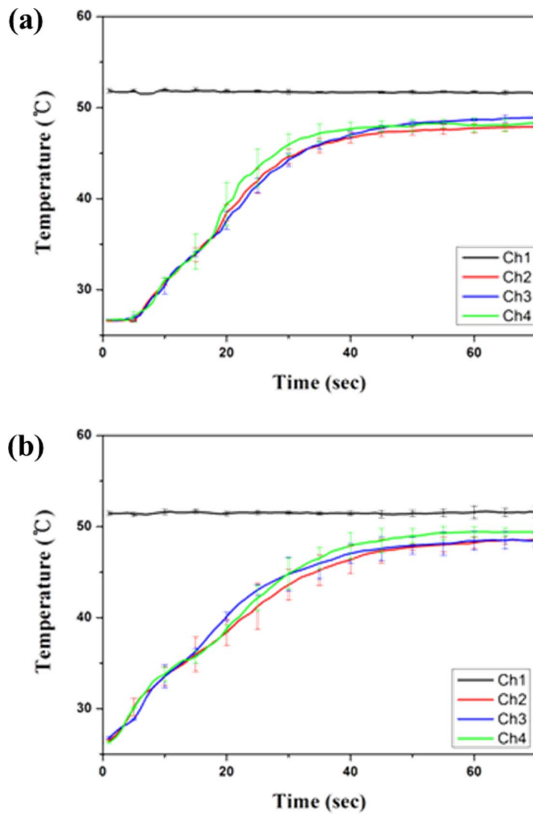


Fig. 10. (a) Heating curves and (b) cooling curves of PCM 43D/PMMA composite film

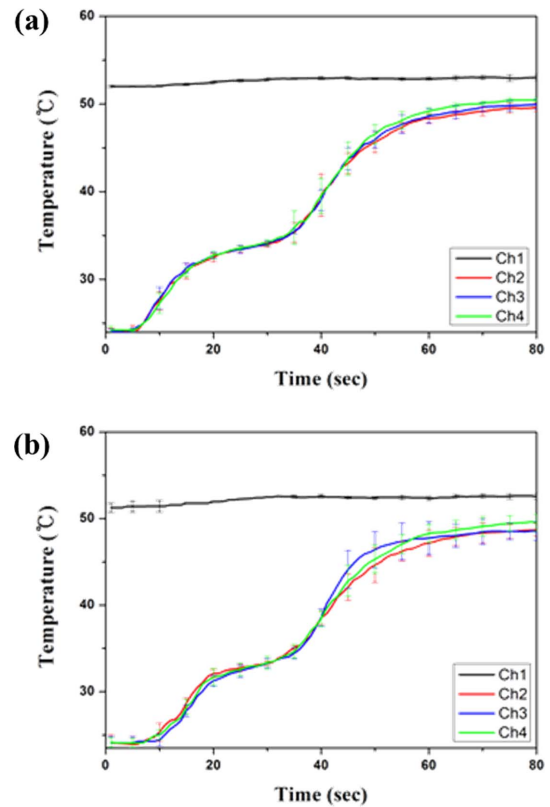


**Fig. 11.** Heating curves of (a) 25 wt% PCM paste/PMMA composite film and (b) 30 wt% PCM paste/PMMA composite film

$$q = \frac{-kA}{\Delta x}(T_2 - T_1) \quad (2)$$

여기서  $q$ 는 열 유속,  $k$ 는 열전도율,  $A$ 는 면적,  $T$ 는 온도 그리고  $\Delta x$ 는 두께를 나타낸다.

즉, 동일한 온도 구배와 샘플 면적 그리고 두께를 가진 물질의 열 전달은 열전도율에 의해 결정된다. 따라서 열전도율이 높은 흑연과 그래핀에 의해 Hybrid PCM/PMMA 복합 필름의 외부 열 방출은 기존의 PCM/PMMA 복합 필름에 비해 향상되어 상변화 시간 증가에 따른 방열 성능도 향상될 것으로 예상하였으며 Fig. 12에 나타난 방열 성능 평가 결과, 본 가설이 실험적으로 입증되었음을 확인하였다. Fig. 12(a)의 Graphite/PCM/PMMA 복합 필름 샘플의 온도 상승 곡선에서 33°C 부근에서 상변화 구간이 관찰된다. 이는 PCM 37D를 동일하게 사용한 PCM 37D/PMMA 복합 필름의 결과와 동일한 것으로 흑연 시트에 의한 상변화 온도 변화는 없는 것으로 확인되었다. 하지만 상변화 시간은 18.347 sec로 기존의 PCM 37D/PMMA 복합 필름의 상변화 시간(9.400 sec)보다 약 2배 증가한 수치를 보여 방열 성능 또한 약 2배 증가한 것을 확인하였다. Fig. 12(b)의 Graphene/PCM/PMMA 복합 필름 샘플의 온도 상승 곡선에서도 역시 동일한 상변화 온도(33°C)를 보였고, 상변화 시간은 14.306 sec



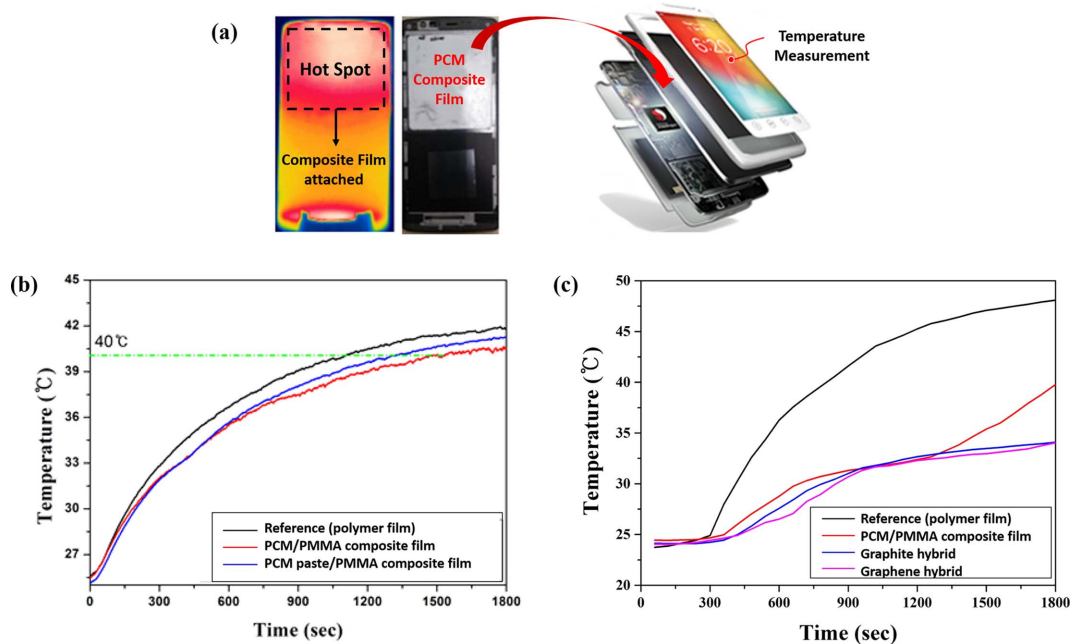
**Fig. 12.** Heating curves of (a) graphite/PCM/PMMA composite film and (b) graphene/PCM/PMMA composite film

로 기존의 PCM/PMMA 복합 필름의 상변화 시간보다는 증가하였지만 Graphite/PCM/PMMA 복합 필름 보다는 더 짧은 시간을 나타냈다. 이는 일반적으로 흑연(500 W/m·K) 보다 더 높은 열전도율을 가진 것으로 알려진 그래핀(5000 W/m·K)의 방열 성능 효과가 더 커야 함에도 불구하고 반대의 결과가 나타난 것은 앞서 분석하였듯이 그래핀의 주름진 부분, 여러 그래핀 층이 존재하는 부분 그리고 PMMA 코팅 잔여물이 그래핀 필름의 열전도율에 영향을 미쳐 흑연 시트보다 얇은 두께를 가짐에도 불구하고 상대적으로 낮은 방열 성능을 나타낸 것으로 보인다.

### 3.6 전자기기에서의 방열 성능 평가

마지막으로, 본 연구의 개발 동기인 전자기기에서의 방열 성능 평가를 위해 LG 전자의 도움으로 실제 스마트폰 내부에 PCM/PMMA 복합 필름을 도입하여 기기를 작동하였을 때 나타나는 발열 거동을 평가하였다. 열화상 카메라로 관측된 주요 열원부위에 PCM/PMMA 복합 필름을 부착하였고, 작동 시간에 따른 외부 표면에서의 온도 변화를 살펴 보았다. 평가의 대조군으로 동일한 두께의 PMMA 필름을 사용하였고, 그 결과를 Fig. 13(b)에 나타내었다. Reference 대비 33°C 부근에서 PCM/PMMA 및 PCM Paste/PMMA 복합 필름을 부착한 스마트폰에서 열 지연 효과가 관측되었





**Fig. 13.** (a) Schematic of thermal test of PCM/PMMA composite film in smart phone; (b), (c) Heating curves of smart phone with different films attached on the hot spot

으며, 40°C까지 도달하는데 걸리는 시간이 reference 대비 각각 6 min, 3 min이 증가하였음을 확인하였다. PCM Paste/PMMA 복합필름을 부착한 스마트폰의 방열 성능이 PCM/PMMA 복합필름을 부착한 스마트폰 보다 떨어지는 것은 3.4. 부분에서의 결과와 동일하다. Fig. 13(c)에는 Hybrid PCM/PMMA 복합필름을 부착한 스마트폰의 방열 성능을 비교하였다. 흑연 시트와 그래핀 필름을 도입함으로써 스마트폰의 방열 성능은 Reference 대비 약 286% 향상되었고(상변화 시간: 14 min → 40 min), 기존 PCM/PMMA 복합필름 대비 약 154% 향상되었다(상변화 시간: 26 min → 40 min).

#### 4. 결 론

본 연구에서는 전자기기의 방열 성능 향상을 위한 복합 재료 필름을 개발하는데 있어 유기화합물 계 상변화물질을 이용하였고, 상변화물질의 용융점, 필름 제조 방법, 탄소계 물질 도입에 따른 복합필름의 방열 성능 영향을 평가하고 분석하였으며 이를 실제 스마트폰 기기에 부착하여 향상된 방열 성능을 실험적으로 확인하였다. 그 결과, 누출 현상이 방지된 PCM/PMMA 복합필름 제조의 최적 조건을 확립하였고, 열전도율이 높은 탄소계 물질을 도입하여 방열 성능이 향상된 복합필름 제조와 실험을 통한 성능 검증에 성공하였다. 본 연구를 통해 개발된 방열 성능이 우수한 복합필름은 스마트폰, 웨어러블 전자기기, 몸에 부착하는 헬스케어 로봇 부품 등에 활용되어 전자기기의 발열 문제를 효과적으로 해결할 수 있을 것으로 기대된다.

#### 후 기

본 연구는 LG 전자가 지원하는 연구과제와 경기도의 경기도 지역협력연구센터 사업의 일환으로 수행하였음(GRRC 성균관2016-B05, IoT기반 개인맞춤형 헬스케어 로봇 연구).

#### REFERENCES

1. Pola, T., Häkkinen, T., Hännikäinen, J., and Vanhala, J., "Thermal Performance Analysis of 13 Heat Sink Materials Suitable for Wearable Electronics Applications," *Science and Technology*, Vol. 3, No. 3, 2013, pp. 67-73.
2. Tan, F.L., and Tso, C.P., "Cooling of Mobile Electronic Devices using Phase Change Materials," *Applied Thermal Engineering*, Vol. 24, No. 2, 2003, pp. 159-169.
3. Zalba, B., Marin, J.M., Cabeza, L.F., and Mehling, H., "Review on Thermal Energy Storage with Phase Change: Materials, Heat Transfer Analysis and Applications," *Applied Thermal Engineering*, Vol. 23, No. 3, 2003, pp. 251-283.
4. Sharma, A., Tyagi, V.V., Chen, C.R., and Buddhi, "Review on Thermal Energy Storage with Phase Change Materials and Applications," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 13, No. 2, 2009, pp. 318-345.
5. Starner, T., and Maguire, Y., "Heat Dissipation in Wearable Computers aided by Thermal Coupling with the User," *Mobile Networks and Applications*, Vol. 4, No. 1, 1999, pp. 3-13.
6. San, A., "Form-stable Paraffin/High Density Polyethylene Composites as Solid-liquid Phase Change Material for Thermal Energy Storage: Preparation and Thermal Properties," *Energy*



- Conversion and Management*, Vol. 45, No. 13, 2004, pp. 2033-2042.
7. Khudhair, A.M., and Farid, M.M., "A Review on Energy Conservation in Building Applications with Thermal Storage by Latent Heat using Phase Change Materials," *Energy Conversion and Management*, Vol. 45, No. 2, 2004, pp. 263-275.
  8. Frusteri, F., Leonardi, V., Vasta, S., and Restuccia, G., "Thermal Conductivity Measurement of a PCM based Storage System containing Carbon Fibers," *Applied Thermal Engineering*, Vol. 25, No. 11, 2005, pp. 1623-1633.
  9. Morisson, V., Del Barrio, E.P., and Rady, M., "Heat Transfer Modelling within Graphite/PCM Composite Materials for High Temperature Energy Storage," Proceeding of the 10th International Conference on Thermal Energy Storage, Talence, France, May, 2006.