

## Solvent 별 분산에 따른 Milled Carbon Fiber의 배열성 연구

이성권\* · 최성웅\*\*†

### Effect of the Alignment of Milled Carbon Fiber Dispersed in Various Solvents

Sung-Kwon Lee\*, Sung-Woong Choi\*\*†

**ABSTRACT:** In order to efficiently control the heat generation of electronic devices, many research has been conducted on thermally conductive composite materials. In this study, milled carbon fiber was dispersed in four solvent to investigate the relationship of carbon fiber alignment according to dispersion by solvents, and carbon fiber-reinforced composite material(CFRP) was manufactured using vacuum filtration. To evaluate the arrangement of CFRP the arrangement of the prepared specimen was observed under an optical microscope, and thermal conductivity was measured by Laser Flash Analysis. The Through-plane thermal conductivity of CFRP using NMP and Ethanol was 10.79 W/mK and 10.57 W/mK respectively, which were improved by 218% and 209% compared to the In-plane thermal conductivity. The high viscosity of the solvent greatly affects the shear of the fluid, and it seemed to determine the alignment of the filler.

**초 록:** 전자기기 발열을 효율적으로 제어하기 위해 열전도성 복합재료에 대한 많은 연구가 진행되고 있다. 본 연구에서는 solvent 별 분산에 따른 carbon fiber의 배열성 관계를 알아보기 위해 Milled Carbon Fiber를 4가지 Solvent에 분산하고 Vacuum filtration 방법을 통해 탄소섬유강화 복합재료(CFRP)를 제작하였다. CFRP의 배열성을 알아보기 위해 광학현미경 관측과 섬광법을 통한 열전도도를 측정하였다. NMP와 Ethanol을 Solvent로 사용하여 성형한 CFRP의 평면두께방향 열전도도가 각각 10.79 W/mK, 10.57 W/mK 값을 보였고 이는 평면내부방향 열전도도에 비해 218%, 209% 향상된 결과를 보였다. Solvent의 상대적으로 높은 점도 값은 solvent 유체의 높은 전단력에 영향을 주어 성형 시 필러의 배열성을 결정하는데 영향을 주는 것으로 판단된다.

**Key Words:** 열전도도(Thermal conductivity), 진공 여과(Vacuum filtration), 탄소 섬유(Carbon fiber), 배열(Alignment)

## 1. 서 론

소자를 사용하는 전자기기에서 발생하는 발열은 기기의 성능 저하 및 소재의 열화를 일으킨다. 기기 내부 부품의 수명과 신뢰도에 영향을 미치는 방열특성은 기능성 복합재의 개발 수요를 증가시키고 있으며 이는 열전도도를 높이는 방향으로 이루어지고 있다[1,2]. 열전도도가 높은 금속

의 경우 내부 발열을 효율적으로 제어할 수 있기 때문에 냉각을 위해 과거에 주로 사용되었으나 경량성 및 휴대성이 중요한 소형 전자기기에서는 사용하기에 적합하지 않다. 따라서 최근에는 이러한 문제를 해결하기 위해 복합재료를 사용하는 사례가 증가하고 있다[3,4]. 복합재료는 금속 무게의 절반이면서 금속과 동등하거나 우수한 기계적 물성치를 가지는 특징이 있다[5]. 이러한 복합재료의 개발 방

Received 12 January 2022, received in revised form 25 January 2022, accepted 21 February 2022

\*Gyeongsang National University, Graduate School of Mechanical System Engineering

\*\*†Gyeongsang National University, Mechanical System Engineering, Corresponding author (E-mail: younhulje@gnu.ac.kr)

향은 기지재에 필러를 첨가하여 필러의 특성을 복합재료에 부여한 다양한 기능성 복합재 개발로 이루어지고 있다. 열적 물성치와 관련되어 주로 사용되는 필러에는 탄소나노튜브(CNT)[6], 그래핀(Graphene)[7], 탄소섬유(Carbon Fiber, CF)[8], 질화붕소(Boron nitride, BN)[9] 등이 있다. 이 중 CF를 사용한 탄소섬유강화 복합재(Carbon Fiber reinforce polymer composite, CFRP)는 높은 열전도도와 낮은 열팽창률 및 우수한 기계적 물성치를 가지고 있다. CF는 그래핀이나 탄소나노튜브에 비해 상대적으로 다소 낮은 열전도도의 물성치를 가지고 있지만 경제성이나 가공성의 이점으로 인해 많은 활용도를 보이고 있다.

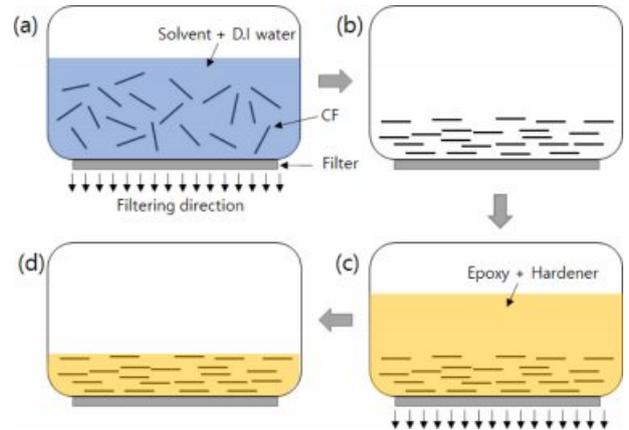
상기 언급한 다 종류의 필러를 사용한 기능성 복합재료의 개발은 열적 물성치를 향상시키는 방열 복합재료의 연구들로 다양하게 진행되고 있다. Shahil 등[10]은 그래핀을 사용하여 열전도도가 기지의 1000%만큼 향상되는 것을 증명하였다. Zheng 등[11]은 BN과 구리입자를 결합한 하이브리드 필러를 CFRP에 적용하여 열전도도를 6.14 W/mK 까지 상승 시킨 결과를 도출하였다. Li 등[12]은 stress field를 사용하여 CF 배열을 진행하였고 46 wt%에서 32.6 W/mK의 열전도도 값을 보이는 CFRP를 제작하였다. Li 등[13]은 Multilayer graphene(MLG)을 사용하여 복합재료를 제작하였고, 11.8 wt%에서 33.54 W/mK 열전도도 값을 보였다. 상기의 연구들에서는 열적으로 우수한 필러들을 사용한 복합재료 제작과 관련된 연구들을 보여준다. 이러한 연구들과 관련하여 필러들의 배열이 열적 물성치 향상에 중요한 영향을 주기 때문에 다양한 필러 배열의 연구가 진행되고 있으며 배열과 관련된 공정들은 Vacuum bagging, Mesh filtering, Electromagnetic field, Vacuum filtration 등의 다양한 방법들을 통해 시도되고 있다.

본 연구에서는 열적 물성치 향상을 위한 필러로 Milled CF 필러를 사용하여 복합재료의 열적 물성치에 영향을 주는 배열과 Solvent의 관계를 연구하였다. 제작한 복합재료의 배열성 평가는 열적 물성치 측정과 현미경 관찰을 통해 진행하였다. 성형 시 사용된 solvent 종류에 따라 배열성에 영향을 미치는 인자를 고려하여 CF 배열 특성을 확인하였다.

## 2. 실험

### 2.1 시편 및 실험 장치

실험에 사용할 CF 분산 Solution 제작을 위해 다종류 solvent와 D.I water(water, Honeywell)를 사용하였다. Solvent는 용해도가 우수한 4가지 용매인 Acetone(SK chemical), NMP(JUNSEI), DMF(JUNSEI), Ethanol(DUKSAN)을 사용하였다[14,15]. Solvent와 D.I water Mixture(Volume ratio 4:1)에 CF(XN-100-25M, Nippon Graphite Fiber Corporation, D: 10  $\mu\text{m}$  L: 250  $\mu\text{m}$ )를 첨가한 후 Ultrasonication을 1시간 진행한 뒤 Vacuum filtration을 진행하였다. Filter는 Hyundai



**Fig. 1.** Procedure of vacuum filtration (a) Filtering process of CF/Solvent mixture, (b) Aligned CF on Filter, (c) Filtering process of Epoxy-Hardener mixture through CF structure, (d) Composite of CF/Epoxy

micro사의 PTFE-H(pore size: 0.45  $\mu\text{m}$ )를 사용하였다. CF 구조 내부의 Solvent를 기화시키기 위해 100  $^{\circ}\text{C}$  오븐에서 1시간 가열하였다. 이후 Epoxy와 Hardener Mixture(weight ratio 10:8)를 사용하여 Vacuum filtration을 1시간 진행하였다. Epoxy는 KUKDO사의 YD-114를 사용하였다. 시편의 안정화를 위해 실온에서 24시간 1차 경화한 후 100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 2시간 동안 2차 경화한 뒤 시편(10 mm  $\times$  10 mm  $\times$  2 mm, W  $\times$  D  $\times$  H)을 열전도도 측정을 위해 제작하였다.

시편제작에서 사용된 Ultrasonic Processor는 SONICS사의 VCX-500 모델을 사용하였고 Amplitude 40%, Pulse On/Off는 4 s/4 s의 조건으로 실험을 진행하였다. Vacuum filtration은 Solvent 내에 분산된 CF를 Vacuum pump를 이용하여 Filter 위에 배열 하는데 CF를 Filter와 평행한 방향으로 배열되게 된다. Fig. 1에 시편 제작과정을 표현하였다.

### 2.2 열전도도 측정

열전도도는 섬광법(Laser Flash Apparatus, LFA)을 이용한 열전도도 측정기(LFA-467, NETZSCH)를 사용하여 측정하였다. LFA의 원리는 시편의 한쪽 면을 에너지 펄스로 가열한 뒤 반대편 면의 온도를 측정하여 열확산율 값을 측정하고 열전도도를 계산하는 방법이다. 배열 방향에 따른 열전도도 차이를 확인하기 위해 열전도도를 두 가지 방향으로 측정하였다. CF의 길이방향이 평면내부방향인 경우를 In-plane 방향으로, 평면두께방향인 경우 Through-plane 방향으로 명명하였다. CF 배열상태를 확인하기 위해 시편을 두 가지 방향으로 가공하여 열전도도의 차이를 측정함으로써 배열성을 확인하였다. Fig. 1과 같이 Vacuum filtration을 이용하여 시편을 제작하면 시편 내부의 CF는 In-plane 방향으로 배열되는데 이를 90 $^{\circ}$  회전하여 Through-plane 방향 시편을 제작하였다.

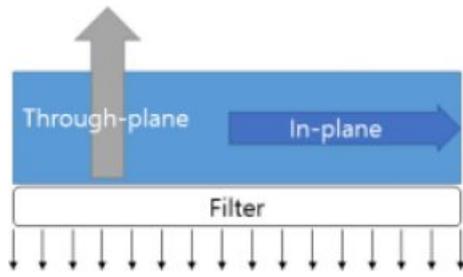


Fig. 2. Direction of Through-plane and In-plane

### 2.3 CF/Epoxy 복합재 현미경 관찰과 TGA 분석

시편 내부의 CF 배열성을 확인하기 위해 디지털 현미경 (PRESTIGE 1.7x - 660x, TAGARNO)을 사용하여 시편의 단면을 관찰하였다. 시편 내 CF 함량을 측정하기 위해 TGA 분석을 진행하였다.

## 3. 결 과

### 3.1 현미경 관찰과 TGA

제작된 시편의 배열 방향성을 확인하기 위해 시편의 단

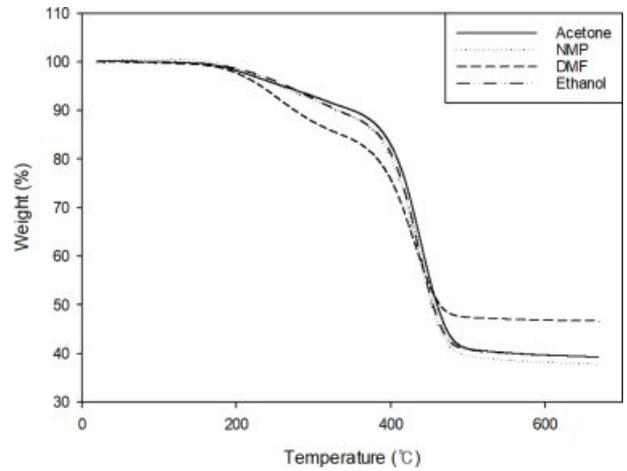


Fig. 4. Result of TGA analysis for CF/Epoxy composite of each Solvent

면을 관찰하였다. Fig. 3는 두 가지 방향으로 관찰한 시편 단면의 사진이다. 현미경으로 관찰한 시편의 단면은 CF 방향이 각각 In-plane과 Through-plane 방향으로 배열되어 있음을 확인할 수 있다.

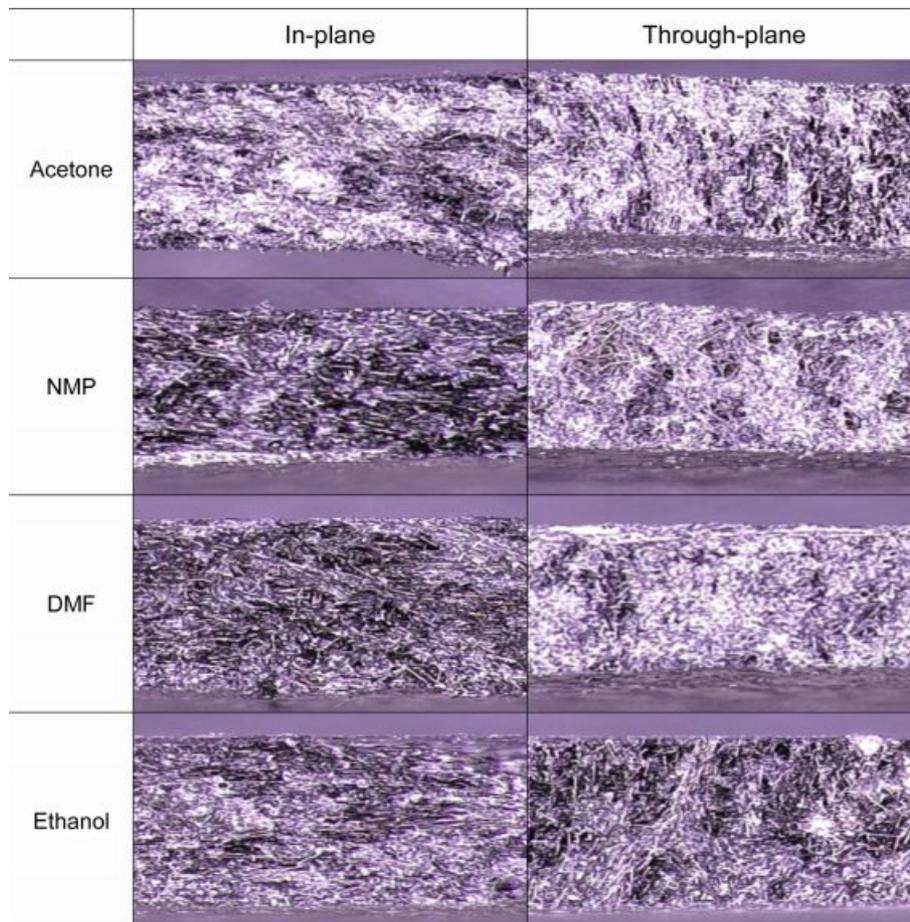


Fig. 3. CF Alignment of CF/Epoxy composite in each solvents

Fig. 4는 4가지 Solvent에 대해 TGA 분석을 진행한 결과를 보여준다. 약 200°C에서 열분해가 시작되고 400°C 부근부터 weight 감소가 가속되는 모습이 나타나는데 이는 Epoxy 열분해로 인한 weight loss 현상으로 온도에 따른 급격한 기울기가 나타남을 알 수 있다. Solvent별 가공된 시편의 weight percent는 solvent 종류에 따라 다른 범위를 보였다. 전체적으로 CF 함량이 약 37~46 wt.%의 범위를 보였고 그 중 DMF를 사용한 시편은 약 46 wt.%를 보였다.

### 3.2 열전도도 측정 결과

Table 1은 실험에 사용된 4가지 Solvent에 대해 두 가지 방향으로 측정된 열전도도를 나타내고 있다. Through-plane은 In-plane에 비해 높은 열전도도를 가지고 solvent 별 In-plane과 Through-plane의 경향성이 비슷한 것을 알 수 있다. Acetone, NMP, DMF 및 Ethanol에서 제작된 시편의 Through-plane 열전도도는 In-plane 열전도도와 비교하여 각각 172%, 218%, 151%, 209% 향상된 값을 보여주었다. 동일한 실험조건에서 Solvent에 따라 열전도도 값에 차이가 존재하는 것으로 보아 제작 공정 중 solvent가 CF 배열에 영향을 주는 것이라고 판단할 수 있다. Fig. 4의 TGA 결과를 보면 DMF는 CF가 약 46 wt.%이고 타 solvent는 약 40 wt.%를 보이므로 DMF의 CF 함량이 더 높은 것을 알 수 있다. 열전도성 물질의 함량이 높으면 그에 따라 높은 열전도도 값을 가지는 것이 자명하나 DMF 시편의 CF 함량이 타 solvent보다 약 6 wt.%p 높음에도 열전도도 측정값에 큰 향상이 없는 것으로 보아 비슷한 CF 함량에서는 CF 배열이 열전도도 향상에 지배적인 것을 확인하였다.

Table 2는 사용한 Solvent의 물성치를 보여주고 있다. 물성치 중 NMP, Ethanol, DMF, Acetone 순으로 점도가 높은 것을 확인할 수 있다. Solvent별 가공된 시편의 열전도도가 가장 높은 NMP와 Ethanol의 경우, Solvent의 점도가 CF 배열에 영향을 미쳤다고 고려할 수 있다. Filtration 과정에서 CF의 배열은 filter를 통과하는 공정에서 많은 영향을 받는데, solvent에 분산된 CF의 경우 solvent 유체에 의한 전단에

**Table 1.** Thermal conductivity of in-plane and through-plane direction

	Acetone	NMP	DMF	Ethanol
In-plane (W/mK)	2.77	3.39	3.21	3.42
Through-plane (W/mK)	7.54	10.79	8.06	10.57

**Table 2.** Properties of solvent at 20°C

	Acetone	NMP	DMF	Ethanol
Surface tension (mN/m)	25.20	40.79	37.10	22.10
Viscosity (mPa·s)	0.30	1.67	0.79	1.07
Density (g/cm <sup>3</sup> )	0.79	1.03	0.95	0.79

의해 전반적인 배열이 결정된다. 유체의 점도가 전단에 영향을 미치므로 점도가 높은 유체의 경우 배열성에 큰 영향을 미친다. 따라서 점도가 높은 NMP와 Ethanol에 분산된 CF 시편이 높은 열전도도를 보였다. 하지만 solvent의 점도와 열전도도는 선형관계를 보이지 않는데 이는 Ultrasonication 공정을 진행하면 초음파로 인해 solvent에 열이 발생하고 이로 인해 온도가 상승하여 solvent의 점도가 낮아지는 것이 원인으로 보인다. 또한 NMP와 DMF는 water와 혼합하는 과정에서도 열이 발생하여 타 solvent보다 점도 하락이 많이 발생하는 것으로 판단된다. 이러한 이유로 실제 solvent/water 용액의 점도는 Table 2의 점도와 다른 수치를 가지기 때문에 제작된 시편의 열전도도는 각 solvent 사이에 큰 차이가 발생하지 않는 것으로 간주되고 열전도도의 결정 요인은 CF volume fraction보다 점도가 지배적인 것을 확인하였다.

## 4. 결 론

본 실험에서는 Vacuum filtration을 이용한 CF/Epoxy 복합 재료 제작과정에서 용해도가 우수한 4가지의 solvent를 사용하여 solvent와 CF 배열의 관계를 연구하였다. 광학현미경을 통해 시편 표면의 CF 배열을 관찰하였고 열전도도 측정을 통해 CF의 배열정도를 확인하였다. Through-plane과 In-plane이 solvent 별 열전도도 경향성은 서로 비슷했으며 Through-plane은 In-plane보다 높은 열전도도 값을 보였다. 제작한 시편 중 높은 값을 보이는 시편은 NMP와 Ethanol을 사용한 시편으로 각각 10.79 W/mK, 10.57 W/mK의 열전도도 값을 보였다. 이는 높은 점도 값으로 인한 높은 유체 전단력이 CF 배열에 영향을 미치기 때문에 두 solvent의 열전도도가 높은 것으로 확인하였다. 본 연구를 통해 점도가 열전도성 필러 배열에 미치는 정도를 확인하였으며 측정된 결과들을 활용하여 향후 방향열 열성 복합재료 제작기술 개발에 활용할 수 있을 것으로 예상된다.

## 후 기

본 연구는 2021년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(No.20213000000020).

## REFERENCES

- Hong, H., Bae, K.J., and Yu, J., "Effect of Boron Nitride on Mechanical Properties, Thermal and Electrical Conductivities of Carbon Fiber Reinforced Plastics," *Composites Research*, Vol. 33, No. 3, 2020, pp. 153-160.
- Zakaria, M.Y., Sulong, A.B., Sahari, J., and Suherman, H., "Effect of the Addition of Milled Carbon Fiber as a Secondary

- Filler on the Electrical Conductivity of Graphite/epoxy Composites for Electrical Conductive Material,” *Composites Part B: Engineering*, Vol. 83, 2015, pp. 75-80.
3. Kim, S.Y., Noh, Y.J., Jang, J., and Choi, S.K., “Conductive Properties of Thermoplastic Carbon Fiber Reinforced Plastics Highly Filled with Carbon Fiber Fabrics and Conductive Carbon Fillers,” *Composites Research*, Vol. 34, No. 5, 2021, pp. 290-295.
  4. Lee, J., Jeon, K., Choi, J., Chung, G., Suh, J., Choi, I., and Shin, K., “A Development of the Lightweight Wearable Robot with Carbon Fiber Composite,” *Composites Research*, Vol. 28, No. 3, 2015, pp. 81-88.
  5. Khan, Z.I., Arsad, A., Mohamad, Z., Habib, U., and Zaini, M.A.A., “Comparative Study on the Enhancement of Thermo-mechanical Properties of Carbon Fiber and Glass Fiber Reinforced Epoxy Composites,” *Materials Today: Proceedings*, Vol. 39, 2021, pp. 956-958.
  6. Cho, H.K., “Nano-Composite's Mechanical and Radioactive Barrier Characteristics by Nano Size CNT & Graphite Particles Alignment,” *Composites Research*, Vol. 26, No. 6, 2013, pp. 355-362.
  7. Jung, S.Y., and Paik, K.W., “Effects of Alignment of Graphene Flakes on Water Permeability of Graphene-epoxy Composite Film,” 2014 IEEE 64th Electronic Components and Technology Conference (ECTC), IEEE, 2014.
  8. Choi, B.K., Lee, H.J., Choi, W.K., Lee, M.K., Park, J.H., Hwang, J.Y., and Seo, M.K., “Effect of Carbon Fiber Content on Thermal and Electrical Conductivity, EMI Shielding Efficiency, and Radiation Energy of CMC/PVA Composite Papers with Carbon Fibers,” *Synthetic Metals*, Vol. 273, 2021, 116708.
  9. Jiang, Y., Shi, X., Feng, Y., Li, S., Zhou, X., and Xie, X., “Enhanced Thermal Conductivity and Ideal Dielectric Properties of Epoxy Composites Containing Polymer Modified Hexagonal Boron Nitride,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 107, 2018, pp. 657-664.
  10. Shahil, K.M.F., and Balandin, A.A., “Graphene-based Thermal Interface Materials,” 2011 11th IEEE International Conference on Nanotechnology, IEEE, 2011.
  11. Zheng, X., Kim, S., and Park, C.W., “Enhancement of Thermal Conductivity of Carbon Fiber-reinforced Polymer Composite with Copper and Boron Nitride Particles,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 121, 2019, pp. 449-456.
  12. Li, M., Ali, Z., Wei, X., Li, L., Song, G., Hou, X., Do, H., Greer, J.C., Pan, Z., Liu, C.T., Jiang, N., and Yu, J., “Stress Induced Carbon Fiber Orientation for Enhanced Thermal Conductivity of Epoxy Composites,” *Composites Part B: Engineering*, Vol. 208, 2021, 108599.
  13. Li, Q., Guo, Y., Li, W., Qiu, S., Zhu, C., Wei, X., Chen, M., Liu, C., Liao, S., Gong, Y., Mishra, A.K., and Liu, L., “Ultrahigh Thermal Conductivity of Assembled Aligned Multilayer Graphene/epoxy Composite,” *Chemistry of Materials*, Vol. 26, No. 15, 2014, pp. 4459-4465.
  14. Barton, A.F.M., “CRC Handbook of Solubility Parameters and other Cohesion Parameters”, Routledge, 2017.
  15. Konios, D., Stylianakis, M.M., Stratakis, E., and Kymakis, E., “Dispersion Behaviour of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide,” *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol. 430, 2014, pp. 108-112.