

PA 6/Expanded Graphite(EG) 복합체의 제조 및 가공방법에 따른 열전도 특성 연구

장은진 · 김준석* · 문동준* · 윤여성* · 오미혜* · 김연철†

공주대학교 신소재공학부 고분자공학전공, *한국자동차연구원 강소특구연구원
(2022년 4월 25일 접수, 2022년 6월 22일 수정, 2022년 6월 28일 채택)

Study on the Thermal Conductive Properties of PA 6/Expanded Graphite Composites According to Fabrication and Processing Methods

Eun Jin Jang, Jun Seok Kim*, Dong Joon Moon*, Yeo Seong Yoon*, Mee Hye Oh*, and Youn Cheol Kim†

Major in Polymer Science and Engineering, Kongju National University, 1223-34 Cheonan way, Cheonan 31080, Korea
*Korea Automotive Technology Institute, 303 Pungse-ro, Pungse-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungnam 31214, Korea
(Received April 25, 2022; Revised June 22, 2022; Accepted June 28, 2022)

초록: 지방족 폴리아미드 6(나일론 6, PA 6)/팽창 그래파이트(expanded graphite, EG) 복합체의 열전도 특성을 연구하기 위해 복합체 제조 방법 및 시험편 가공방법을 달리하여 열전도도를 측정하였다. PA 6/EG 복합체의 제조시 주투입구와 부투입구의 EG 함량을 변경하였으며, 시험 가공방법으로는 압축성형과 사출성형을 적용하였다. 기계적 특성을 고려할 때 EG 함량은 40 wt%가 최적이었으며, 부투입구의 EG 함량이 높을수록 열전도 특성은 증가하는 경향을 보여주었다. 또한 사출성형 시험편 대비 압축성형 시험편의 열전도도가 우수하게 나타났으며 이는 EG의 배향과 연관된 것으로 측정되었다. EG의 투입에 의해 복소점도가 일부 상승하는 결과를 보였지만, 복합체의 가공특성에 영향을 미치는 수준은 아닌 것으로 분석되었다.

Abstract: In order to study the thermal conductive properties of the aliphatic polyamide 6 (nylon 6, PA 6)/expanded graphite (EG) composite, the thermal conductivity was measured by varying the composite fabrication method and the specimen processing method. When the PA 6/EG composite was manufactured, the EG content of the main feeder and the side feeder was changed, and compression molding and injection molding were applied as specimen processing methods. Considering the mechanical properties, the optimal EG content was 40 wt%, and the higher the EG content in the side feeder, the higher the thermal conductive properties were. In addition, the thermal conductivity of the compression-molded specimen compared to the injection-molded specimen was excellent, which was measured to be related to the orientation of the EG. It was analyzed that the complex viscosity was partially increased by the addition of EG, but did not affect the processing characteristics of the composite.

Keywords: thermal conductivity, expanded graphite, Nylon 6, main and side feeder, orientation.

서 론

최근 자동차, 디스플레이, 가전, LED 분야 등 다양한 산업 분야에서 사용되고 있는 전기·전자제품은 고성능, 고출력, 소형화가 추구하고 있으며, 새로운 응용 제품의 출현으로 인해 열 방출 문제가 발생되고 있다. 전자소자가 고집적화 될수록 전력 밀도 증가로 인하여 더 많은 열이 발생하고, 소자의 기능저하, 오작동, 열화 등으로 전자장치의 성능, 수명 및 신뢰성에 매우 심각한 영향을 미치고 있다.^{1,2} 이와 같은 발열 문

제로 반도체 소자 및 전기·전자제품에서 열을 배출시키는 기술이 지속적으로 연구되고 있다.

방열의 가장 중요한 특성은 열전도도이다. 일반적으로 열전도도는 도체에서 발생하는 열 전달로 재료가 열을 얼마나 빨리 확산시킬 수 있는지 나타내며, 주로 충돌에 의해 물질의 움직임 없이 인접한 인자로 입자의 진동 에너지가 전달되는 것에 해당한다.³

벌크 고분자의 경우 복잡한 사슬 형태로 무정형 측면에서 열적으로 많은 결점이 존재하고 있으며, 고분자 사슬 말단에서 포논(phonon) 산란으로 인해 일반적인 고분자의 열전도도는 0.2-0.3 W/mK로 매우 낮으며 빠른 열 전달을 어렵게 한다.^{4,6}

현재 방열 소재는 열전도도가 높은 금속 재료가 많이 사용

†To whom correspondence should be addressed.
younkim@kongju.ac.kr, ORCID 0000-0003-1094-7460
©2022 The Polymer Society of Korea. All rights reserved.

되고 있으나, 금속과 비교하여 열전도성 입자를 충전한 고분자 복합체는 가공이 용이하고 비용이 저렴하며 부식에 대한 내구성 및 경량화 등 많은 장점이 있고,⁷ 응용 분야 요구에 맞게 전도성 특성을 조절할 수 있으므로 조명, 변압기, 배터리 하우징과 같은 방열판 응용 분야에 사용할 수 있다.⁸

열가소성 수지 중 나일론6(polyamide 6, PA 6)은 우수한 열 안정성, 높은 인장강도 및 낮은 유전상수로 자동차 산업 및 전자기기에 주로 사용되고 있다. 열전도도가 낮은 고분자에 열 전도성을 부여하기 위해 금속, 세라믹 및 탄소를 충전하여 열전도성 고분자 복합체를 제조한다.⁹⁻¹¹

최근에는 경량화 이슈에 따라 금속이나 세라믹 필러에 비해 무게가 가벼운 탄소를 충전한 열전도성 고분자에 대한 관심이 높아졌다.

탄소 기반 재료에는 흑연(graphite), 그래핀(graphene), 탄소 나노튜브(carbon nanotube, CNT), 탄소섬유(carbon fiber) 등이 있으며, 탄소 필러의 높은 고유 열전도도로 인해 열전도성 충전제로 사용한 복합체 연구가 진행되어 왔다.^{12,13} 하지만 복합체 내에서 필러의 고유 열전도도는 결합 및 산란과 매트릭스에 결합되면서 열전도를 결과는 기대만큼 좋지 않다. 계면의 존재, 결합 및 결정질 구조의 불연속성은 열전도율을 급격히 감소시킨다.¹⁴ 또한 전도성 필러의 부하가 많아질수록 열전도도는 높았지만, 높은 부하수준에서도 열전도율은 고유효값에 근접하지 못했다.

탄소 필러 중 팽창흑연(expanded graphite, EG)은 고유의 높은 열전도도(약 300 W/mK)를 가지며, 다른 탄소 기반 충전제에 비해 가격이 저렴하다. 층간 간격이 있는 흑연 시트로 구성된 고유한 구조로 효과적인 3차원 열전도 네트워크를 형성하고, 높은 중량비를 가진 마이크로 필러는 입자 간 거리를 줄여 우수한 열 경로로 열전도를 향상시킬 수 있다.^{15,16}

보고된 연구에 따르면 폴리에틸렌왁스(polyethylene wax)로 사전 용융 혼합된 EG/LLDPE 복합체는 24.89 vol%의 EG 함량에서 19.6 W/mK의 열전도율을 나타내었고 LLDPE에 비해 5927%를 초과하였으며,¹⁷ 파라핀(paraffin)과 2, 4, 7, 10 wt% EG를 포함하는 복합체는 각각 0.22, 0.40, 0.52, 0.68, 0.826 W/mK로 보고되었다.¹⁸ 이와 같이 열전도 복합체에 대한 많은 연구가 수행되고 있지만 대부분은 믹서(mixer)나 볼 밀(ball mill)의 가공방법을 사용하였고 열전도도 샘플의 경우 압축성형으로 제작되었다. 또한 부품성형을 위해 사출, 압출, 압축 등 다양한 성형공법이 활용되고 있고, 산업적 측면에서는 복합체의 연속가공과 제품생산이 중요하지만 이에 대한 연구는 미미한 상태이다. 그리고 기존 열전도성 복합체 연구에서 매트릭스와 필러의 종류가 다양하게 연구되고 있지만, PA 6/EG 복합체에 대한 연구는 미흡한 상태로 이에 대한 체계적인 연구가 필요하다.

따라서 본 연구에서는 PA 6 수지 기반으로 열전도를 효과적으로 발휘할 수 있을 것으로 예상되는 EG를 혼입하여 함

량 및 가공방법(압축성형 및 사출성형)에 따른 고분자 복합체의 열전도도를 비교하였고, 열전달 경로와 복합체 물성에 영향을 주는 중량비가 유지될 수 있는 필러 구조 최적화를 위해 주투입구(main feeder)와 부투입구(side feeder)에 따른 열전도도 변화 및 기계적 물성(인장, 굴곡특성)과의 상관관계를 파악하고자 하였으며, PA 6/EG 복합체 제조공정에 따른 유변학적 특성에 대해서도 고찰하였다.

실 험

재료. 본 연구에서는 열전도성 복합체를 제조하기 위해 열가소성 수지인 PA 6는 태광산업사(Korea)의 점도 61.41 cP(± 0.05)인 TK2451 grade를 사용하였고, 복합체의 전도성 충전제 EG는 네오인더스사(Korea)의 순도 99.02%, 비중 1.20, 입도 180 μm ($\geq 70\%$)를 사용하였다.

복합체 제조 및 성형방법에 따른 시편제작. PA 6와 탄소 필러는 80 °C 오븐에서 6시간 이상 건조한 후, 필러 함량 및 종류에 따라 이축압출기(twin extruder, 바우테크사, Korea, Ø-19, L=760 mm, D=19 mm, L/D=40)를 이용하여 260/260/260/260/250/240 °C, 250 rpm 조건에서 PA 6/EG 복합체를 제조하였다. PA 6 복합체에 EG를 10-50 wt%까지 충전하였으며, 충전제의 주/부투입에 따른 열전도도 효과를 확인하기 위해 EG를 40 wt%로 고정하였고 주/부투입비는 40/0, 30/10, 20/20, 10/30, 0/40로 PA 6/EG 복합체를 제조하였다. 그리고 EG의 분산으로 인한 열전도도 효과 및 기계적 물성을 확인하기 위해 50 wt%로 마스터배치(master batch)하여 주투입구에서 40 wt%의 EG가 첨가된 PA 6/EG 복합체를 제조하였다. 열전도도 측정을 위한 압축시편은 265 °C에서 Hot press (큐머시스사 QM900M, Korea)를 이용하여 제작하였고, 사출시편은 사출기(injection molding machine, 동신유압사 PRO-80MC hybrid, Korea)를 이용하여 사출온도 260 °C, 금형온도 80 °C 조건에서 열전도도와 기계적 물성 시편을 제작하였다.

분석 및 측정. 열전도도는 직경 50.8 mm, 두께 3 mm인 원형 시편을 사용하여 정상상태로 측정되며 ASTM E1530규격을 갖는 guarded heat flow meter법(thermal conductivity meter, Anter사 NITHERM2022, USA)으로 측정하였다. 필러 보강에 따른 인장 및 굴곡특성은 만능재료시험기(UTM, Tinius olsen사 H50KS, USA)를 사용하여 측정하였고, 인장강도는 ASTM D638 표준시험법으로 5 mm/min에서 측정하였으며, 굴곡강도는 ASTM D790으로 2 mm/min에서 측정하였다. 이상시험결과에 대한 신뢰성 확보를 위해 각각의 시험항목은 5 회 이상시험을 진행하여 평균값으로 사용하였다. 열분석으로는 열중량분석기(TGA, Perkinelmer사 Pyris1, USA)를 이용하였으며, 승온속도는 20 °C/min으로 40-800 °C@N₂의 온도 범위에서 실험을 진행하였고, 시차주사열량계(DSC, Perkinelmer사 DSC4000, USA)를 사용하여 시편 4-6 mg을 취해 50-300

°C@N₂ 온도범위에서 승온 및 냉각 속도 10 °C/min 조건에서 측정하였다. 시편의 형태학적 특성을 확인하기 위해 주사전자현미경(SEM, COXEM사 CX-200, Korea)과 광학현미경(OM, SOMETECH사 STV-ics 305B, Korea)을 이용하였으며, SEM 시편은 관찰표면을 Au코팅하여 가속전압 20 kV으로 ×100, ×500의 배율로 관찰하였고, 광학현미경으로는 압출된 복합체를 포름산(formic acid)에 녹인 후 ×100 배율로 관찰하였다. 가공특성을 확인하기 위해 고분자 복합체의 복소점도는 유변측정기(rheometer, Anton paar사 MCR 302e, Austria)를 이용하여 290 °C에서 1.3 mm gap간격으로 parallel plate 방법으로 frequency 0.01-100 Hz, strain 0.01% 조건으로 측정하였다.

결과 및 토론

Figure 1과 Table 1은 PA 6/EG 복합체의 TGA, DSC, 비중 측정 결과이다. 필러 함량별에 따라 제조된 복합체의 EG 함량분석은 TGA를 이용하여 측정하였고, 실제 투입된 10, 20, 30, 40, 50 wt%와 큰 차이를 보이지 않았다. 분해 온도(T_d)는 전체 무게에서 무게 손실이 약 5%가 되었을 때를 측정된 것으로 PA 6의 경우 423 °C에서 관찰되었고, EG 함량이 증가할수록 440-452 °C로 PA 6 대비 약 20 °C 정도 증가하였다. 이는 열이력에 따른 열안정성 효과를 보여준다. 결정성 고분자의 결정화 및 용융거동 관찰을 위해 DSC를 측정한 결과 결정화 온도(T_c)의 경우 PA는 168.36 °C에서 관찰되었고, 10-50 wt%의 EG가 첨가된 PA 6/EG 복합체는 193 °C 부근에서 관찰되었으며 PA대비 온도가 크게 증가하였다. 이는 첨가된 EG가 불균일 핵제로 작용된 것으로 유추 가능하며,¹⁹ 함량에 따른 변화는 관찰되지 않았다. 용융 온도(T_m)의 경우는

Table 1. T_c , T_m , T_d , and specific gravity of PA 6 and PA 6/EG composites

| Sample | T_c (°C) | T_m (°C) | T_d (°C) | Specific gravity |
|-----------|------------|------------|------------|------------------|
| PA 6 | 168.36 | 225.01 | 423.18 | 1.135 |
| PA 6/EG10 | 193.22 | 222.00 | 440.62 | 1.194 |
| PA 6/EG20 | 193.87 | 221.70 | 441.97 | 1.273 |
| PA 6/EG30 | 193.49 | 222.73 | 446.65 | 1.334 |
| PA 6/EG40 | 193.14 | 221.93 | 450.20 | 1.416 |
| PA 6/EG50 | 193.30 | 222.10 | 452.89 | 1.508 |

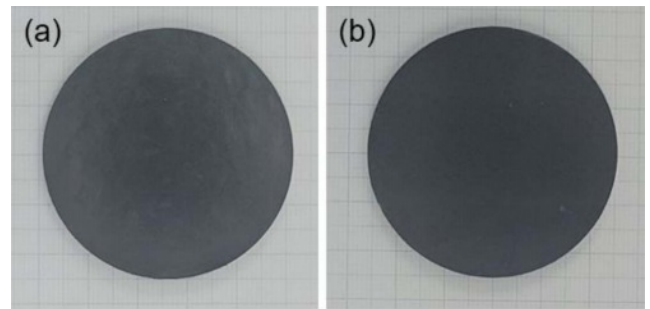


Figure 2. (a) Compression specimen; (b) injection specimen.

222 °C(±5) 부근에서 관찰되었고 큰 변화는 없었다. 이는 복합체 내에 필러가 불균일 핵제로 작용하여 결정화온도에는 영향을 주지만 용융온도에 영향을 미치는 결정구조 또는 결정화과정에는 큰 변화가 없기 때문으로 판단된다.²⁰ 함량이 높아질수록 비중은 증가하였다.

Figure 2는 성형방법(압축성형, 사출성형)에 따른 열전도 특성을 비교하기 위해 제조된 PA 6/EG 복합체의 열전도도 시험 시편을 제시하였고, Figure 3은 성형방법과 EG 함량에 따

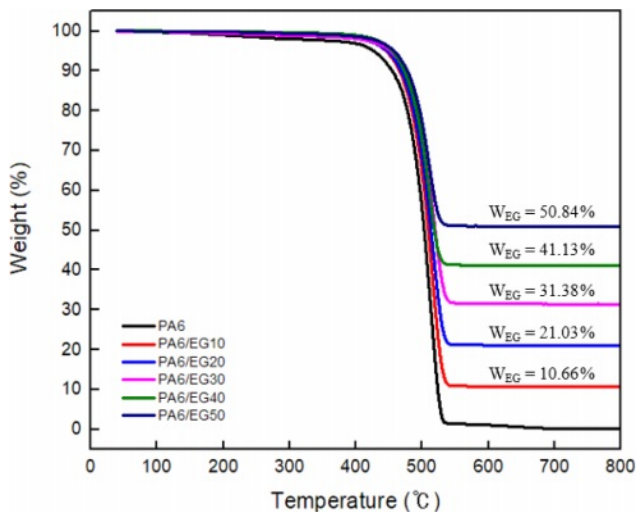


Figure 1. TGA analysis by heating temperature and mass reduction rate.

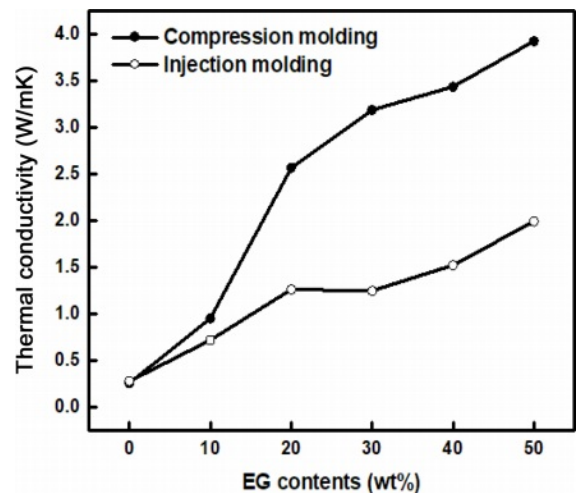


Figure 3. Thermal conductivity comparison between compression molding and injection molding of PA 6/EG composites.

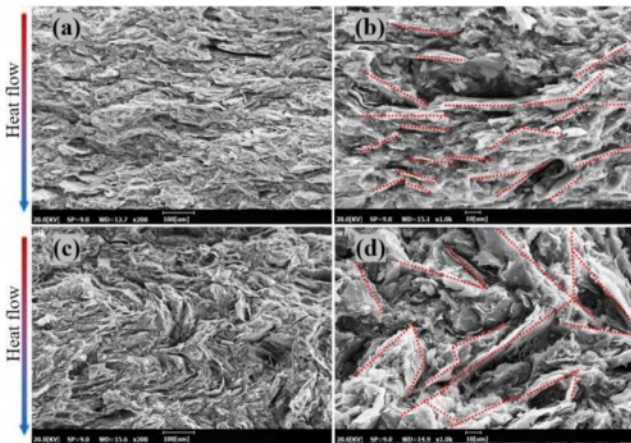


Figure 4. SEM images of the PA 6/EG composites with EG=40 wt%: (a) $\times 200$; (b) $\times 500$ in injection molding; (c) $\times 200$; (d) $\times 500$ in compression molding.

른 열전도도를 나타낸 것이다. PA 6/EG 복합체는 가공상의 어려움으로 인해 EG의 함량은 50 wt%로 제한되었다. 압축성형(compression molding) 및 사출성형(injection molding) 시편은 EG 함량이 많아질수록 열전도도가 증가하는 경향을 보였으며, 함량이 높아질수록 필러들 사이의 입자 간격이 줄어들며 접촉면적이 증가한 것으로 유추할 수 있다. 성형방법에 따른 열전도도 차이는 PA 6의 열전도도 대비 EG 50 wt% 기준으로 압축성형 시편의 경우 약 3.926 W/mK로 15배, 사출성형의 경우 1.991 W/mK로 약 7배 상승되었다. 사출성형 시편에 비해서 압축성형 시편이 모든 함량에서 높은 열전도도를 보이는 것은 성형 방법에 따른 EG의 배향에 의한 것으로 보인다. Figure 4의 성형 방법에 따른 시편 파단면 SEM 이미지에서 사출성형 시편 (a)와 (b)는 EG가 사출방향으로 배향되었고, 압축성형 시편 (c)와 (d)는 EG가 랜덤하게 배열된 것을 확인할 수 있다. 사출성형의 경우 EG가 측정면에 수직인 방향으로 배향되었고, 압축성형은 성형과정에서 사출성형과 같이 일정방향으로 전단력이 작용하지 않기 때문에 필러의 배향이 크게 나타나지 않아 랜덤 배열의 형태학적 특성을 나타내 수평, 수직 방향이 모두 존재하여 열전도 네트워크를 형성하므로 열전도도가 높아진 것으로 해석할 수 있다. 이는 필러들이 네트워크를 형성할 수 있는 함량 수준, 공간적 배열 및 방향이 열전도도에 강한 영향을 미치고 있음을 확인할 수 있었다.²¹

Figure 5는 사출성형 시편의 인장 및 굴곡강도를 나타낸 것이다. 인장강도의 경우 20 wt%까지는 변화가 없었으며, 이후 함량에서 로딩효과가 나타났다. EG의 함량이 0-40 wt%로 증가할수록 굴곡강도는 증가했으나, 50 wt%에서는 로딩효과가 나타나지 않았다. 함량이 증가할수록 복합체의 기계적 특성이 증가하는 것은 고강도의 필러 충전 효과로 판단되며,²² 50 wt%부터는 고분자 수지에 대한 필러 보강 효과의 한계(분산

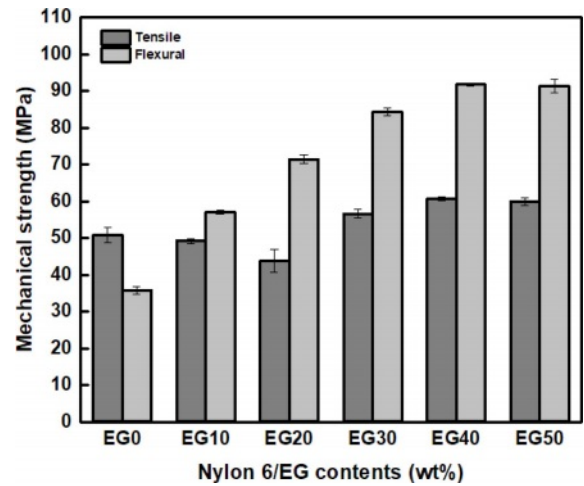


Figure 5. Mechanical properties of PA 6/EG composites: (a) tensile strength; (b) flexural strength.

등)를 넘는 것으로 유추할 수 있다. 주/부 투입구의 함량 변화 실험에는 EG를 40 wt%로 하여 실험을 진행하였다.

Figure 6은 EG 함량을 40 wt%로 고정하고 주/부 투입구의 함량(wt%)을 각 40/0, 30/10, 20/20, 10/30, 0/40으로 변경하여 투입 위치에 따른 열전도도 변화와 마스터배치(MB)가 적용되었을 때의 분산 효과에 따른 열전도도 변화를 관찰하였다. 압축성형과 사출성형의 열전도도 결과는 압축성형에서 2배 이상 높은 열전도도를 나타냈고, 40 wt%의 고정함량에서 부투입구에 투입되는 EG 함량이 증가할수록 열전도도가 증가되는 결과가 관찰되었다. 또한 Figure 3에서 40, 50 wt%의 EG가 첨가된 PA 6/EG 복합체의 사출시편 열전도도가 각각 1.521, 1.991 W/mK이었으나, 투입 위치의 변경으로 부투입구에 40 wt%의 EG 투입 시 2.096 W/mK로 주투입구에 50

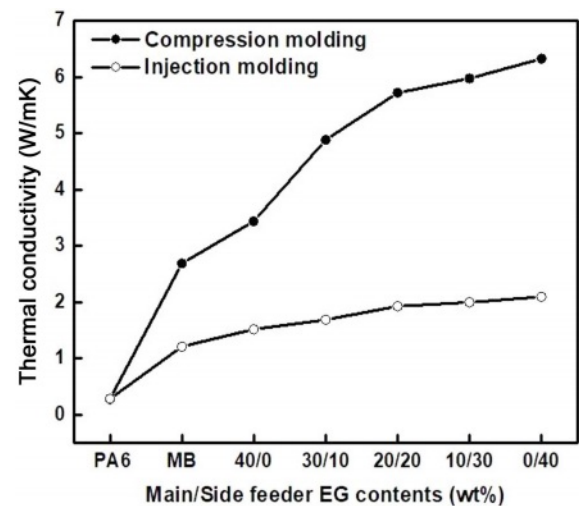


Figure 6. Thermal conductivity comparison between compression molding and injection molding of PA 6/EG composites by main/side feeder content and master batch.

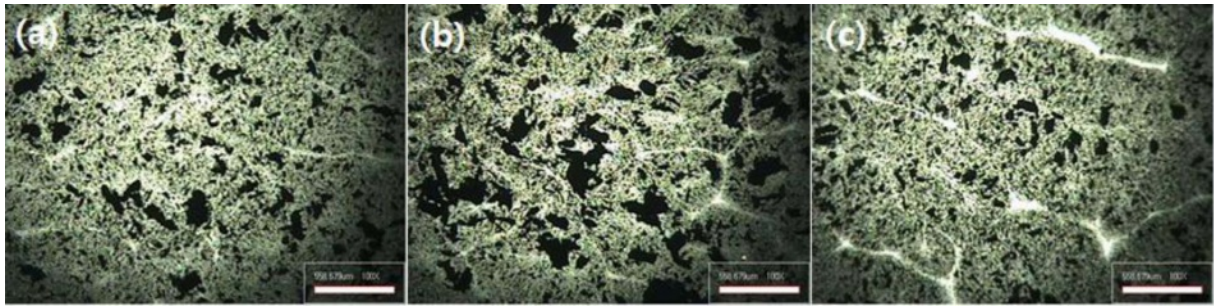


Figure 7. OM image of (a) main 40 wt%; (b) side 40 wt%; (c) MB 40 wt%.

wt%를 투입하는 것보다 높은 열전도도를 나타냈다. 이는 필러가 부투입구에 투입되는 경우가 주투입구에 투입한 것보다 더 높은 중형비를 유지하여 필러간 네트워크 형성이 용이하여 우수한 열 경로를 구축해 최종 재료에서 더 높은 열전도율을 달성한 것으로 유추할 수 있다. 또한 높은 중형비를 갖는 필러는 열전달에 대한 저항을 줄여 포논 전도를 촉진시켜 열전도도를 높이는 데 도움이 되었다.²³⁻²⁵ 반면, MB가 적용된 PA 6/EG 복합체에서는 부투입구에 40 wt%로 투입되어 제조된 복합체보다 2배 가까이 낮아지는 결과가 나왔다. EG가 MB로 적용되면 분산혼합(distributive mixing)과 함께 길이가 짧아지면서 분산성이 향상되지만 열전도도를 높이는 방법으로는 적합하지 않은 것으로 나타났다. 분산으로 인해 더 작은 필러들이 채워지면서 입자 사이의 계면이 극적으로 증가되어 계면 열 저항이 증가하고 포논 전송이 산란된 것으로 판단되며, 필러 간 불완전한 접촉으로 인해 접촉 저항도 포논 전달 산란을 유발하는 것으로 보인다.^{26,27} 분산이 너무 잘 이뤄진다면 필러 상호간 접촉면적이 작아지는 현상이 발생하며, 열전달이 아주 낮아지게 되어 오히려 낮은 열전도도를 갖

는 것으로 유추할 수 있다.

Figure 7은 40 wt%의 EG를 주투입구, 부투입구 및 MB 적용한 복합체의 광학현미경 사진으로 부투입구에서 제조된 복합체(b)에서 상대적으로 큰 입자의 분포가 관찰되었다. 이는 필러를 부투입구에 투입하는 경우가 혼련성이 낮아져 필러의

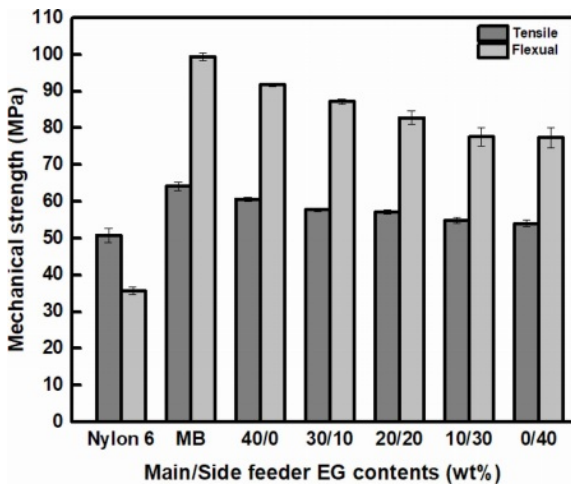


Figure 8. Mechanical properties of PA 6/EG composites with different feeding ratio of main and side: (a) tensile strength; (b) flexural strength.

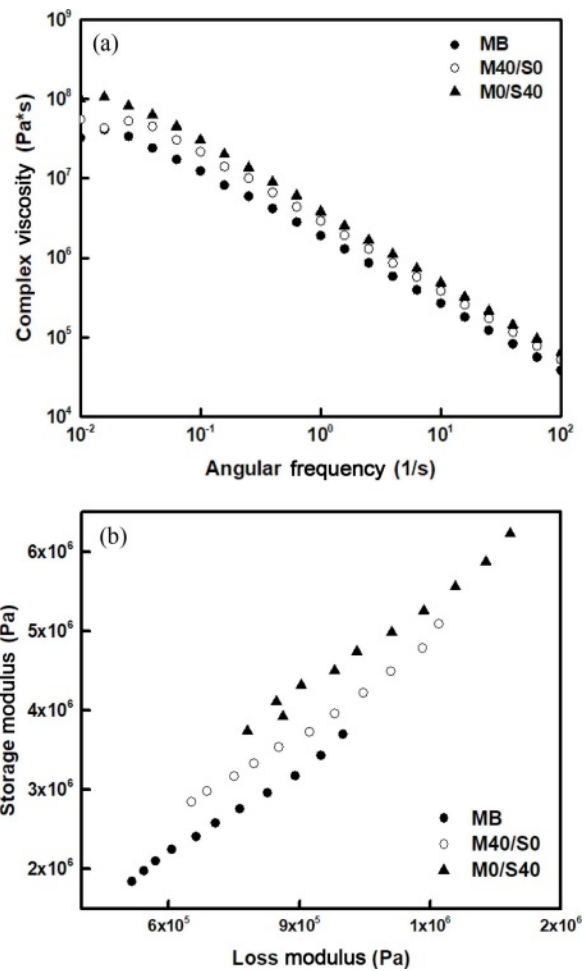


Figure 9. Rheology of PA 6/EG composites with feeding ratio of main/side and with mater batch applied: (a) complex viscosities; (b) Han plot.

형상을 더 유지할 수 있는 것으로 볼 수 있으며, 열전도도에 서 유리하게 작용된 것으로 보인다. EG 함량 분석은 TGA로 측정하였고, EG의 증량은 각 40 wt%(±5)로 확인되었다.

Figure 8은 EG 40 wt%를 주/부투입비가 다른 PA 6/EG 복합체 및 MB가 적용된 복합체의 사출성형 시편의 기계적 인장 및 굴곡 강도를 나타낸 것이다. 주투입구에서 부투입구의 비율이 높아질수록 인장 및 굴곡강도는 감소되었으나, PA 6 보다 인장 및 굴곡 강도는 우수하였다. MB가 적용된 복합체의 경우에는 열전도도는 낮았지만 기계적 강도는 우수하게 나타났다. 부투입구에서 EG 투입비율이 높아질수록 주투입구에 비해 고분자와 혼합되는 시간이 짧아져서 EG와의 혼련성이 낮아 기계적물성이 낮아지는 것으로 예측된다. 하지만 부투입구에 40 wt% EG가 모두 투입된 경우도 산업용 열전도 소재로 사용하기에는 충분한 물성으로 판단된다.

Figure 9(a)는 주/부투입비에 따른 PA 6/EG 복합체와 MB 복합체의 주파수에 따른 복소점도(complex viscosity)를 나타낸 것이다. MB, M40/S0, M30/S10, M20/S20, M10/S30, M0/S40에 대해 복소점도 및 탄성률 측정을 실시하였는데, 경향성에 있어 특이점이 나타나지 않아 MB, M40/S0, M0/S40 시료에 대해서는 결과를 제시하였다. MB, M40/S0, M0/S40로 갈수록 높은 값을 보이며 이는 필러 입자 사이가 클수록 점도가 증가하는 경향을 보여주는데, 이는 필러의 크기가 크고 분산이 열세할수록 입자의 특성이 반영되어 탄성 특성이 증가하는 경향을 보여주기 때문이다. 탄성 특성에 대한 추가적인 분석을 위해 저장탄성률(storage modulus, G')과 손실탄성률(loss modulus, G'')에 대한 그래프를 Figure 9(b)에 나타냈다. 분산이 열세한 M0/S40 시편의 탄성 특성이 가장 크게 나타나고 있으며 이는 분산이 열세하기 때문이다. 분산이 상대적으로 우수한 MB시료의 경우 크기가 작은 필러가 나일론 6 용융체 내에 분산 용화되어 수지의 특성에 희석되기 때문에 탄성 특성의 발현이 크지 않기 때문이다. 비록 부투입구에 EG가 투입된 시료의 점도가 증가하기는 하지만 증가되는 폭이 크지 않아 사출성형과 같은 고분자 가공시 큰 영향을 미치는 수준은 아닌 것으로 판단된다.²⁸

결 론

PA 6/EG 복합체는 전도성 필러의 함량이 10-50 wt%로 증가할수록 높은 열전도도를 나타냈었고, 인장강도와 굴곡강도의 경우 EG 40 wt% 이상에서는 유지되는 특성을 나타내었다. EG가 주투입구에 투입된 EG 50 wt% 사출시편의 열전도도가 1.991 W/mK였으나, 부투입구에서 40 wt%의 EG를 투입한 사출시편은 2.096 W/mK를 보였다. 이는 부투입구의 투입비가 높아질수록 EG 입자의 크기에 차이가 났으며 입자 크기가 크게 유지될수록 열전도도에 효과가 있음을 확인하였다. 또한, MB의 적용은 기계적 특성과 가공적인 측면에서는

우수하지만 열전도도 측면에서는 효과가 크지 않음을 확인하였다. 또한 사출성형 시편 대비 압축성형 시편의 열전도도는 2배 정도 증가하는 것으로 확인되고 이는 가공시 전단력에 의한 EG의 배향과 연관된 것으로 SEM을 이용하여 확인하였다. PA 6/EG 복합체의 제조 및 시편 가공방법에 따라 복소점도의 변화가 있지만 그 폭이 크지 않아 가공성에 영향을 미치는 수준은 아닌 것으로 해석되었다.

감사의 글: 본 연구는 산업통상자원부의 소재부품기술개발사업(과제번호: 20012979)의 지원으로 수행된 것입니다.

이해상충: 저자들은 이해상충이 없음을 선언합니다.

참 고 문 헌

- Chen, J.; Huang, X.; Sun, B.; Jiang, P. Highly Thermally Conductive Yet Electrically Insulating Polymer/Boron Nitride Nanosheets Nanocomposite Films for Improved Thermal Management Capability. *ACS Nano* **2019**, 13, 337-345.
- Dai, W.; Lv, L.; Lu, J.; Hou, H.; Yan, Q.; Alam, F. E.; Li, Y.; Zeng, X.; Yu, J.; Wei, Q.; Xu, X.; Wu, J.; Jiang, N.; Du, S.; Sun, R.; Xu, J.; Wong, C.-P.; Lin, C.-T. A Paper-Like Inorganic Thermal Interface Material Composed of Hierarchically Structured Graphene/Silicon Carbide Nanorods. *ACS Nano* **2019**, 13, 1547-1554.
- Burger, N.; Laachachi, A.; Ferriol, M.; Lutz, M.; Toniazzi, V.; Ruch, D. Review of Thermal Conductivity in Composites: Mechanisms, Parameters and Theory. *Prog. Polym. Sci.* **2016**, 61, 1-28.
- Chae, H. G.; Kumar, S. Making Strong Fibers. *Science* **2008**, 319, 908-909.
- Morishita, T.; Katagiri, Y.; Matsunaga, T.; Muraoka, Y.; Fukumori, K. Design and Fabrication of Morphologically Controlled Carbon Nanotube/Polyamide-6-Based Composites as Electrically Insulating Materials having Enhanced Thermal Conductivity and Elastic Modulus. *Compos. Sci. Technol.* **2017**, 142, 41-49.
- Xu, Y.; Wang, X.; Zhou, J.; Song, B.; Jiang, Z.; Lee, E. M. Y.; Huberman, S.; Gleason, K. K.; Chen, G. Molecular Engineered Conjugated Polymer with High Thermal Conductivity. *Science Advances* **2018**, 4, eaar3031.
- Tavman, I. H. Thermal and Mechanical Properties of Copper Powder Filled Poly(Ethylene) Composites. *Powder Technol.* **1997**, 91, 63-67.
- King, J. A.; Tucker, K. W.; Vogt, B. D.; Weber, E. H.; Quan, C. Electrically and Thermally Conductive Nylon 6,6. *Polym. Compos.* **1999**, 20, 643-654.
- Mazov, I. N.; Ilinykh, I. A.; Kuznetsov, V. L.; Stepashkin, A. A.; Ergin, K. S.; Muratov, D. S.; Tcherdyntsev, V. V.; Kuznetsov, D. V.; Issi, J.-P. Thermal Conductivity of Polypropylene-Based Composites with Multiwall Carbon Nanotubes with Different

- Diameter and Morphology. *J. Alloys Compd.* **2014**, 586, S440-S442.
10. Muratov, D. S.; Kuznetsov, D. V.; Il'inykh, I. A.; Mazov, I. N.; Stepashkin, A. A.; Tcherdyntsev, V. V. Thermal Conductivity of Polypropylene Filled with Inorganic Particles. *J. Alloys Compd.* **2014**, 586, S451-S454.
 11. Chiang, T. H.; Ho, P.; Chang, Y. The Preparation of Dendrite- and Needle-Shaped Alloy Particles Coated on Copper Powders by Polyvinylpyrrolidone in Displacement Reaction and Thermal Conductivity on Composites' Characterization. *J. Alloys Compd.* **2014**, 609, 162-167.
 12. Feller, J. F.; Linossier, I.; Grohens, Y. Conductive Polymer Composites- Comparative Study of Polyester-Short Carbon Fibers and Polyepoxy-Short Carbon Fibers Mechanical and Electrical Properties. *Mater. Lett.* **2002**, 57, 64-71.
 13. Bellinghen, C. V.; Probst, N.; Grivei, E. Specific Conductive Carbon Blacks in Plastic Applications. *Polymers and Polymer Composites* **2002**, 10, 63-71.
 14. Giri, A.; Hopkins, P. E.; Wessel, J. G.; Duda, J. C. Kapitza Resistance and the Thermal Conductivity of Amorphous Superlattices. *J. Appl. Phys.* **2015**, 118, 165303.
 15. Chirtoc, M.; Homy, N.; Tavman, I.; Turgut, A.; Kökey, I.; Omastová, M. Preparation and Photothermal Characterization of Nanocomposites Based on High Density Polyethylene Filled with Expanded and Unexpanded Graphite: Particle Size and Shape Effects. *Int. J. Therm. Sci.* **2012**, 62, 50-55.
 16. Noh, Y. J.; Kim, H. S.; Ku, B.; Khil, M.; Kim, S. Y. Thermal Conductivity of Polymer Composites with Geometric Characteristics of Carbon Allotropes. *Adv. Eng. Mater.* **2016**, 18, 1127-1132.
 17. Wei, B.; zhang, L.; Yang, S. Polymer Composites with Expanded Graphite Network with Superior Thermal Conductivity and Electromagnetic Interference Shielding Performance. *Chem. Eng. J.* **2021**, 404, 126437.
 18. Sari, A.; Karaipekli, A. Thermal Conductivity and Latent Heat Thermal Energy Storage Characteristics of Paraffin/Expanded Graphite Composite as Phase Change Material. *Appl. Therm. Eng.* **2007**, 27, 1271-1277.
 19. Zheng, W.; Lu, X.; Wong, S. C. Electrical and Mechanical Properties of Expanded Graphite-reinforced High-density Polyethylene. *J. Appl. Polym. Sci.* **2004**, 91, 2781-2788.
 20. Xia, R.; Sun, M.; Yang, B.; Qian, J.; Chen, P.; Cao, M.; Miao, J.; Su, L. Morphology, Thermal and Crystallization Properties of Polyamide-6/Boron Nitride (BN) Thermal Conductive Composites. *Polymer* **2018**, 42, 230-241.
 21. Chen, H.; Ginzburg, V. V.; Yang, J.; Yang, Y.; Liu, W.; Huang, Y.; Du, L.; Chen, B. Thermal Conductivity of Polymer-based Composite: Fundamentals and Applications. *Prog. Polym. Sci.* **2016**, 59, 41-85.
 22. Al-Hartomy, O. A.; Al-Salamy, F.; Al-Ghamdi, A. A.; Abdel Fatah, M.; Dishovsky, N.; El-Tantawy, F. Influence of Graphite Nanosheets on the Structure and Properties of PVC-Based Nanocomposites. *J. Appl. Polym. Sci.* **2011**, 120, 3628-3634.
 23. Su, J.; Zhao, Y.; Wang, X.; Dong, H.; Wang, S. Effect of Interface Debonding on the Thermal Conductivity of Microencapsulated-Paraffin Filled Epoxy Matrix Composites. *Composites Part A, Applied Science and Manufacturing* **2012**, 43, 325-332.
 24. Zhu, B. L.; Wang, J.; Zheng, H.; Ma, J.; Wu, J.; Wu, R. Investigation of Thermal Conductivity and Dielectric Properties of LDPE-Matrix Composites Filled with Hybrid Filler of Hollow Glass Microspheres and Nitride Particles. *Composites Part B, Engineering* **2015**, 69, 496-506.
 25. Mortazavi, B.; Baniassadi, M.; Bardon, J.; Ahzi, S. Modeling of Two-Phase Random Composite Materials by Finite Element, Mori-Tanaka and Strong Contrast Methods. *Composites Part B, Engineering* **2013**, 45, 1117-1125.
 26. Pak, S. Y.; Kim, H. M.; Kim, S. Y.; Youn, J. R. Synergistic Improvement of Thermal Conductivity of Thermoplastic Composites with Mixed Boron Nitride and Multi-walled Carbon Nanotube Fillers. *Carbon* **2012**, 50, 4830-4838.
 27. Han, Z.; Fina, A. Thermal Conductivity of Carbon Nanotubes and Their Polymer Nanocomposites: A Review. *Prog. Polym. Sci.* **2011**, 36, 914-944.
 28. Kim, D. E.; Kim, Y. C. Study on the Physical and Rheological Properties of Nylon 66/MWCNT Composites. *Appl. Chem. Eng.* **2013**, 24, 214-218.
- 출판자 공지사항:** 한국고분자화학회는 게재된 논문 및 기관 소속의 관할권 주장과 관련하여 중립을 유지합니다.