

## Thermal conductivity analysis of Al/graphite composite fabricated by a mechanical alloying

Jung-Il Lee, Tae Wan Kim, Yo Han Yoon, Hyun Su Cho and Jeong Ho Ryu<sup>†</sup>

*Department of Materials Science and Engineering, Korea National University of Transportation, Chungju 27469, Korea*

(Received July 28, 2016)

(Revised August 9, 2016)

(Accepted August 12, 2016)

**Abstract** Thermal conductivity is a very important factor for applicability and reliability in electrical devices. In this study, Al/graphite composite is fabricated by a mechanical alloying and heat-treatment and its physical properties are characterized. The XRD peak intensity of the  $Al_4C_3$  ceramic phase observed in the heat-treated Al/graphite composite increased with heat-treatment temperature and time. The thermal conductivity of the heat-treated Al/graphite composite sample was very lower than that of the pure Al sample, and increased with heat-treatment temperature and time.

**Key words** Al/graphite composite, Thermal conductivity,  $Al_4C_3$

## 기계적 합금법에 의한 Al/graphite 복합체 제조 및 열전도도 특성 분석

이정일, 김태완, 윤요한, 조현수, 류정호<sup>†</sup>

한국교통대학교 신소재공학과, 충주, 27469

(2016년 7월 28일 접수)

(2016년 8월 9일 심사완료)

(2016년 8월 12일 게재확정)

**요약** 전자소자내의 방열특성은 제품의 신뢰성을 결정하는 우주 중요한 인자중의 하나이다. 본 연구에서는 Al과 graphite 분말을 기계적 합금법(mechanical alloying)을 이용하여 Al/graphite 복합체 분말을 합성하고, 합성된 분말을 열처리 한 시편에 대한 물리적 특성을 분석하였다. 열처리가 완료된 Al/graphite 샘플에서 열처리 온도 및 시간이 증가할수록  $Al_4C_3$  이차상의 비율이 증가함을 확인하였다. 또한 Al/graphite 샘플의 열전도도는 순수 Al 분말 샘플에 비해 현저히 낮았으나, 열처리 온도와 시간에 비례하여 증가하는 것을 확인하였다.

### 1. 서론

현재, 전기전자 산업이 급속도로 발전함에 따라 소자는 작아지고 휴대용 전자 제품은 얇아지는 추세에 있으며, 이때 소자에서 발생한 열을 제어하는 방법은 매우 중요한 문제로 대두되고 있다. 최근의 논문에서는 CNT, graphene 등이 핸드폰, 디지털 오디오와 개인용 디지털 기기 등에 있어서 새로운 방열 소재로 사용될 수 있다고 발표되고 있다[1]. 또한 무선 통신의 정보를 송신하는 휴대전화 기지국에 사용되는 증폭기에 대해서도 고주파화 및 고출력화가 요구되고 있으며, 이러한 고출력 소자의 방열량이 매우 크기 때문에 방열특성이 매우 중요하

다[2].

소자의 내부에는 장비의 운용시 발생하는 열을 방출시키는 방열 장치(heat-sink)가 있으며, 이러한 방열장치는 주로 구리나 알루미늄 같은 금속 소재를 사용하고 있다. 또한 작은 팬이나 유체의 흐름을 통하여 냉각 속도를 향상시키지만 부피를 줄이는 것에는 한계가 있으며, 특히, 고출력 증폭기의 경우에는 고출력 트랜지스터에서 발생한 대량의 열을 방출시키기 위해서는 종래의 금속 소재로는 방열성이 충분치 못한 것으로 지적되어 왔다[3].

최근, 발광다이오드(Light Emitting Diode; LED)는 화합물 반도체(compound semiconductor)의 PN 접합을 통해 발광원을 구성함으로써 다양한 색의 빛을 구현할 수 있는 반도체 소자를 말하며, 이러한 LED는 수명이 길고, 소형화 및 경량화가 가능하며, 빛의 지향성이 강하여 저전압 구동이 가능하다는 장점이 있다고 알려져 있다[4].

<sup>†</sup>Corresponding author  
E-mail: jhryu@ut.ac.kr

또한 LED는 충격 및 진동에 강하고, 예열시간과 복잡한 구동이 불필요하며, 다양한 형태로 패키징할 수 있어 여러 가지 용도로 적용이 가능하며, 근래에는 LED를 이용하여 백열등, 형광등, 할로겐등 등의 전통 조명램프를 대체하려는 시도가 진행되고 있다. 이러한 조명용 LED는 일반적인 디스플레이용 LED 소자에 비하여 고출력으로 인한 발열특성의 제어가 제품의 신뢰성을 결정하는 주요한 인자로 주목받고 있다.

따라서 이러한 LED 등의 전자소자에 구리(Cu)의 열전도도에 상당하는 400 W/mK 수준의 열전도율이 높고, 소형/박막화가 가능한 유연한 소재개발이 절실한 실정이다. 그 한 예로, 그래파이트(graphite)와 폴리머 복합체를 이용한 방열제품이 개발중이며 그래핀(graphene) 등을 고밀도로 충전한 폴리머를 이용하여 방열성을 더욱 향상시킨 소재 개발을 계속 진행하여 왔다[5, 6].

본 연구에서는, graphite/aluminum 복합체를 기계적 합금법 (mechanical alloying)법을 이용하여 제조하고 상변화, 미세구조, 열전도도 등의 물리적 특성을 분석하고자 한다. 이를 통하여 가전제품과 LED 등에의 방열소재로서의 응용가능성을 확인하고자 하였다. 낮은 열저항, 중량감소, 비용절감, 친환경성과 내식성 등이 우수할 것으로 판단됨.

## 2. 실험 방법

Al 분말(99.9%, -200 mesh)과 graphite 분말을 wt%로 9:1 비율로 혼합하여 고른 분포를 위해 일반 볼밀에서 2시간 정도 혼합을 실시하고 고에너지볼밀에서 10분

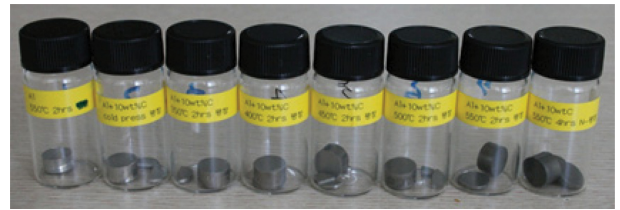


Fig. 1. Heat-treated Al/graphite composite samples.

부터 최대 30분까지 기계적 합금화(mechanical alloying)를 실시하였다[7, 8]. 기계적 합금화를 30분간 실시한 분말을 냉간프레스를 이용하여 5톤의 압력으로 내경 10 mm 금형에 장입하여 압축해서 성형체를 제작하였다. 제작된 성형체를 350부터 550°C의 온도영역에서 2~4 hrs 동안 열처리하였다. 최종적으로 열처리한 샘플(Fig. 1)에 대해 XRD 분석을 통하여 상분석을 실시하였으며, SEM 및 EDS 분석을 통하여 미세구조와 화학적 성분 분석을 실시하였다. 열특성 측정장치(Thermal Analysis System, JP/TC7000, Sinku-Riko)를 이용하여 열적 특성을 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

기계적합금화를 실시한 후 분말의 형상을 관찰하기 위해 SEM을 이용하여 분말의 형상을 관찰한 결과 Fig. 2(a~d)과 같이 처음 혼합한 분말의 경우 Al 분말과 graphite 분말이 일정하게 분포되어 있음을 확인하였으며 기계적 합금화 시간이 증가됨에 따라 분말의 미세화가 진행되는 것을 관찰 할 수 있었다. 기계적 합금화 30분

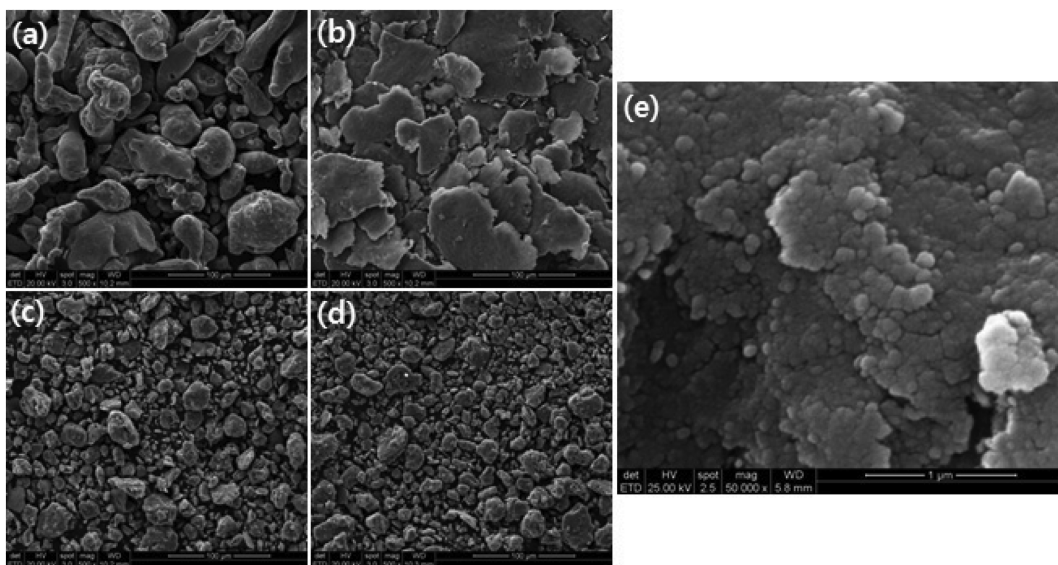


Fig. 2. SEM micrographs ( $\times 500$ ) of the (a) raw mixed powder and high energy ball milled powder during (b) 10 min, (c) 20 min and (d) 30 min. (e) is magnified image ( $\times 5,000$ ) of (d) showing agglomeration with 5~10 nm sized powders.

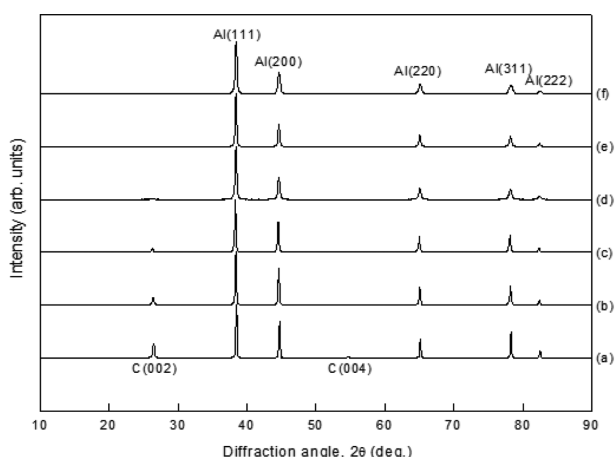


Fig. 3. XRD patterns of the (a) raw mixed powder and Al/graphite composites fabricated by mechanical alloying process for (b) 10 min, (c) 15 min, (d) 20 min, (e) 25 min and (f) 30 min, respectively.

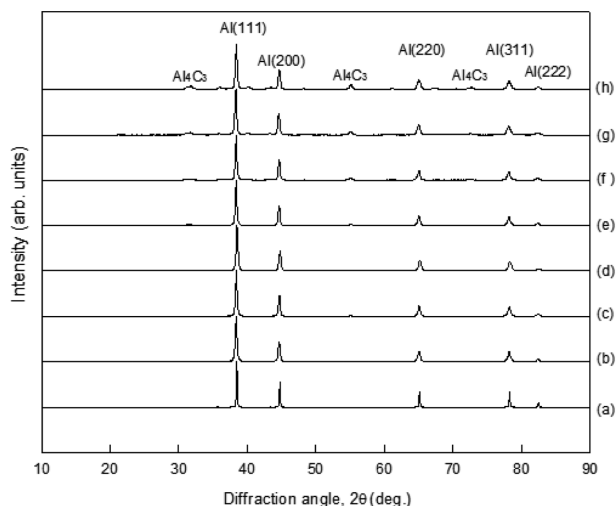


Fig. 4. XRD patterns of the Al/graphite composite heat-treated for 2 hrs at (b) 350, (c) 400, (d) 450, (e) 500 and (f) 550°C. (a) is the XRD on a pure Al powder and (h) is on the Al/graphite composite heat-treated for 4 hrs at 550°C.

을 실시한 경우 Fig. 2(e)와 같이 고배율로 확대해서 관찰한 결과 수 nm의 분말들이 서로 응집되어 있는 것이

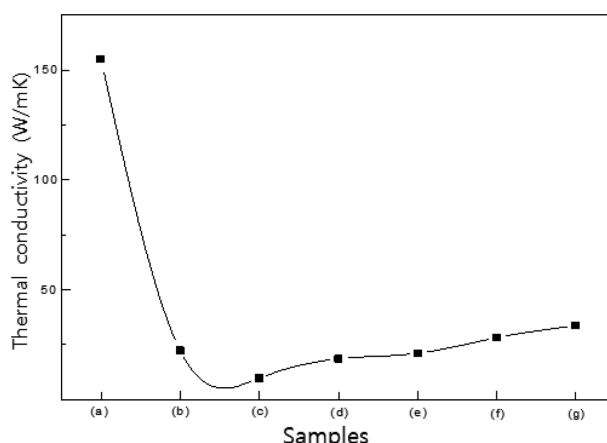


Fig. 5. Schematic diagram for thermal conductivity of the (a) heat-treated pure Al, (b) Al/graphite composite without heat-treatment, and heat-treated Al/graphite sample for 2 hrs (c) at 350, (d) 400, (e) 450, (f) 500 and (g) 550°C, respectively.

관찰되었다.

기계적 합금화를 실시한 시간대별로 상변화의 정도를 관찰하기 위해 XRD 시험을 실시한 결과, Fig. 3과 같이 기계적 합금화 공정을 15분 실시한 시편에서부터 graphite peak이 소멸되는 것을 알 수 있다. 이는 기계적합금화에 따른 복합체 합성이 이루어진 것으로 판단되며 20분 이상 기계적 합금화를 실시한 경우 graphite peak이 완전히 소멸된 것이 관찰되었다.

Fig. 4는 기계적 합금화 공정을 실시한 분말을 열처리한 샘플의 XRD 분석 결과를 보여주고 있다. Fig. 4와 같이 300°C에서 2시간 열처리한 시편부터 Al<sub>4</sub>C<sub>3</sub>상이 발견되었다. 이는 기계적 합금화 공정과 열처리 공정을 통하여 Al과 graphite가 합성되어 새로운 상이 합성된 것으로 추측되며, 열처리 온도 및 열처리 시간이 증가됨에 따라 Al<sub>4</sub>C<sub>3</sub>상의 생성비율이 증가함을 확인할 수 있었다. Al<sub>4</sub>C<sub>3</sub>상은 강도측면에서는 우수한 특성이 있으나 열전도도를 저하하는 원인이 되므로 [9, 10], 방열소재로 사용하기 위해서는 최적의 열처리 온도를 설정하는 것이 필요할 것으로 판단된다.

열처리 온도와 시간에 따라 열처리된 Al/graphite 복합

Table 1

Density and thermal conductivity of the (a) heat-treated pure Al, (b) Al/graphite composite without heat-treatment, and heat-treated Al/graphite sample for 2 hrs (c) at 350, (d) 400, (e) 450, (f) 500 and (g) 550°C, respectively

Samples	Bulk density (g/cm <sup>3</sup> , ratio to theoretical value)		Thermal conductivity (W/mK, ratio to theoretical value)	
(a)	2.619	97 %	155.14	66.9 %
(b)	2.254	83 %	22.18	11.1 %
(c)	2.333	86 %	9.69	4.6 %
(d)	2.299	85 %	18.47	9.0 %
(e)	2.301	85 %	20.98	10.3 %
(f)	2.338	86 %	28.08	13.5 %
(g)	2.297	85 %	33.60	16.5 %

체 시편에 대한 밀도와 열전도도(W/mK)를 측정된 결과를 Table 1과 Fig. 5에 나타내었다. Graphite 첨가에 대한 열전도도 변화를 비교하기 위하여 순수한 Al 분말을 이용하여 제작한 시편에 대한 열전도도 분석도 병행하였다. Fig. 5와 같이 순수 Al 분말을 이용하여 제작한 시편의 경우 155 W/mK의 열전도도 값을 얻을 수 있었으나 graphite를 첨가하여 제작한 Al/graphite 복합체 샘플의 경우에는 열전도도가 감소되는 현상을 발견할 수 있었다. 이는 이론밀도 대비 샘플의 벌크밀도의 저하와  $Al_4C_3$ 상과 같은 열전도도가 낮은 2차상의 생성에 의한 것으로 판단된다. 그러나 열처리 온도와 시간이 증가됨에 따라 열전도도 값이 증가되는 것이 확인되었으며, 보다 최적화된 열처리 공정을 통하여 열전도도 특성을 향상시킬 수 있을 것으로 예상된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 Al과 graphite 분말을 기계적 합금법 (mechanical alloying)과 열처리공정에 의해 Al/graphite 복합체 샘플을 제조하였다. 기계적 합금화 공정을 15분 실시한 시편에서부터 기계적 합금화에 따른 복합체 합성이 이루어진 것으로 확인되었다. 300°C에서 2시간 열처리한 시편부터  $Al_4C_3$ 상이 발견되었으며, 열처리 온도 및 열처리 시간이 증가됨에 따라  $Al_4C_3$ 상의 생성비율이 증가함을 확인하였다. 순수 Al 분말을 이용하여 제작한 시편의 경우에 비해 Al/graphite 복합체 샘플의 경우에는 열전도도가 감소되었으며, 이는 이론밀도 대비 샘플밀도의 저하와  $Al_4C_3$ 상과 같은 열전도도가 낮은  $Al_4C_3$ 상의 생성에 의한 것으로 판단되었다.

#### 감사의 글

본 연구는 2016년도 (주)천지산업과의 위탁연구용역에 의해 지원되었습니다.

#### References

- [ 1 ] P. Sharma, S. Sharma and D. Khanduja, "A study on microstructure of aluminum matrix composites", J. Asian Ceram. Soc. 3 (2015) 240.
- [ 2 ] A.E.M. Warner, J.A.E. Bell and T.F. Stephenson, "Opportunities for new graphitic aluminum metal composite", Mater. Sci. Technol. 14 (1998) 843.
- [ 3 ] S. Kumar and R.N. Singh, "Three-dimensional finite element modeling of residual thermal stresses in graphite/aluminum composites", Acta Mater. Metall. 43 (1995) 2417.
- [ 4 ] S.M. Hwang, J.B. Lee, S.H. Kim and J.H. Ryu, "A review on inorganic phosphor materials for white LEDs", J. Kor. Cryst. Growth & Cryst. Technol. 22 (2012) 233.
- [ 5 ] S. Qu, L. Geng and J. Han, "SiCp/Al composites fabricated by modified squeeze casting technique", J. Mater. Sci. Technol. 23 (2007) 641.
- [ 6 ] T. Etter, M. Papakyriacou, P. Schulz and P.J. Uggowitzer, "Physical properties of graphite/aluminum composites produced by gas pressure infiltration method", Carbon 41 (2003) 1017.
- [ 7 ] S.N. Alam and L. Kumar, "Mechanical properties of aluminum based metal matrix composites reinforced with graphite nanoplatelets", Mater. Sci. & Eng. A 667 (2016) 16.
- [ 8 ] C. Suryanarayana, "Mechanical alloying and milling", Prog. Mater. Sci. 46 (2001) 1.
- [ 9 ] Y. Zhou and Z.Q. Li, "Structural characterization of a mechanical alloyed Al-C mixture", J. Alloys Compd. 414 (2006) 107.
- [ 10 ] C. Qiu and R. Metselaar, "Solubility of carbon in liquid Al and stability of  $Al_4C_3$ ", J. Alloys Compd. 16 (1994) 55.