

입자 강화 복합재의 등가 열전도 계수에 대한 연구 A Study on Effective Thermal Conductivity of Particulate Reinforced Composite

이 재 곤
J. K. Lee

Key Words : Thermal Conductivity(열전도계수), Particulate Reinforced Composite(입자 강화 복합재), Eshelby's Equivalent Inclusion Method(Eshelby의 등가 개재물법), Lamination Theory(적층이론)

Abstract : Effective thermal conductivity of particulate reinforced composite has been predicted by Eshelby's equivalent inclusion method modified with Mori-Tanaka's mean field theory. The predicted results are compared with the experimental results from the literature. The model composite is polymer matrix filled with ceramic particles such as silica, alumina, and aluminum nitride. The preliminary examination by Eshelby type model shows that the predicted results are in good agreements with the experimental results for the composite with perfect spherical filler. As the shape of filler deviates from the perfect sphere, the predicted error increases. By using the aspect ratio of the filler deduced from the fixed filler volume fraction of 30%, the predicted results coincide well with the experimental results for filler volume fraction of 40% or less. Beyond this fraction, the predicted error increases rapidly. It can be finally concluded from the study that Eshelby type model can be applied to predict the thermal conductivity of the particulate composite with filler volume fraction less than 40%.

1. 서 론

복합재의 열전도계수는 복합재를 전자 패키징(Electronic packaging), 열차폐(Heat insulation), 히트 스프레더(Heat spreader) 등에 응용하기 위해서는 중요한 물성중의 하나이다. 복합재의 열전도계수를 정확히 예측하는 것은 이러한 복합재를 성공적으로 설계하고 제조하기 위해 필수적이다. 이론적인 연구결과에 의하면, 복합재의 열전도계수는 충전재의 체적비, 분포, 크기 및 모재와 충전재의 열전도계수, 그리고 접촉상태에 따라 크게 변하는 것으로 알려져 있다.

복합재의 열전도계수를 예측하기 위해 많은 모델들이 제시되었다. 탄성론 문제에 적용되어 왔던 Eshelby의 등가개재물법(Equivalent inclusion method)¹⁾과 Mori-Tanaka의 평균장 이론(Mean field theory)²⁾을 확장하여 단섬유로 강화된 복합재

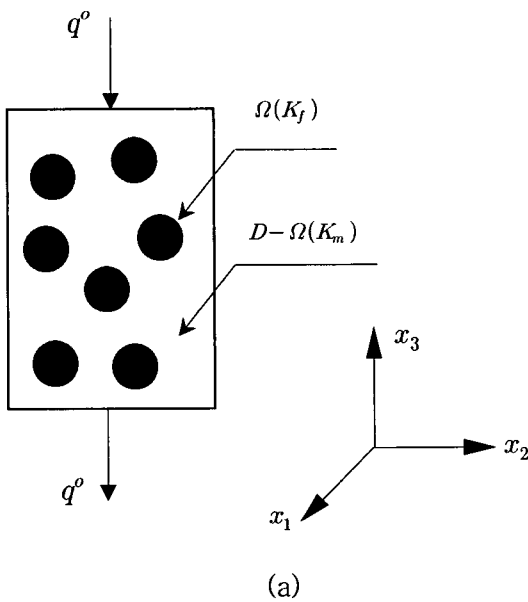
의 열전도계수를^{3)~6)} 예측하였다. 단섬유 복합재의 경우 단섬유의 장단비(Asspect ratio)와 방향분포(Orientation distribution)에 따라 열전도계수는 큰 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 또, 복합재의 탄성계수를 가장 잘 예측하는 것으로 알려진 일반화된 자기일치법(Generalized Self-Consistent Method)^{7)~9)} 적용하여 입자 강화 복합재의 열전도계수를 예측하였다. 이 모델들은 충전재를 일반적으로 구형으로 가정하여 열전도계수를 예측하나, 실제 실험결과와 일치 여부는 규명되어 있지 않다. 복합재의 충전재가 규칙적으로 반복되는 일정한 패턴에 대해서는 균질화기법을¹⁰⁾ 적용하여 수치적으로 복합재의 열전도계수를 구할 수 있음을 보였다.

본 논문에서는 Hatta와 Taya가⁴⁾ 제시한 Eshelby의 등가개재물법과 Mori-Tanaka의 평균장 이론을 결합한 모델을 입자 강화 복합재에 적용하여 열전도계수를 예측하고, 문헌에 보고된 실험결과¹¹⁾와 비교한다. 이를 통해 입자 강화 복합재에 이 모델의 적용 타당성을 검토하고, 장단비의 분포를 갖는 입자강화 복합재의 열전도계수를 예측하기 위한 방안을 제시한다.

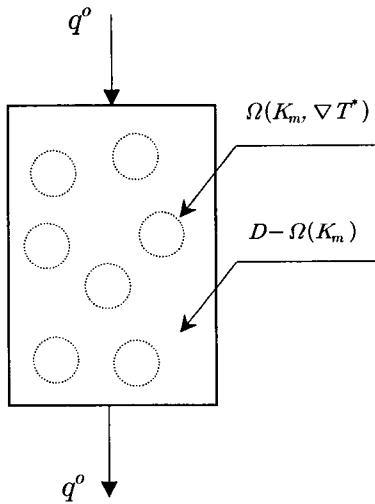
접수일 : 2006년 6월 1일, 채택확정: 2006년 10월 12일
이재곤(책임저자) : 대구가톨릭대학교 기계자동차공학부
E-mail : leejk@cu.ac.kr Tel. 053-850-2720

2. 모델링

해석을 위해 수많은 구형의 충전재가 무한체인 모재에 불규칙적으로 배치된 복합재를 Fig. 1 (a)에 보이며, 이 복합재는 x_3 방향의 일정한 열유속 q^o 를 받고 있다. Fig. 1(b)는 Fig. 1(a)를 Eshelby의 등가개재물법을 이용하여 등가개재물 문제로 변환한 것이다. 모재와 충전재는 등방성의 성질을 갖고, 각각의 열전도계수는 k_m 과 k_f 값을 갖는다. 이후 아래첨자 m 및 f 는 모재와 충전재를 나타낸다.



(a)



(b)

Fig. 1 Analytical model for calculation of temperature gradient in the matrix and filler : (a) The original problem, (b) Transformation into Eshelby's equivalent inclusion problem

하나의 충전재가 복합재에 추가되었을 때, 이 충전재는 복합재내의 충전재를 대표하는 것으로 Eshelby의 등가개재물법을 적용하면 충전재의 열유속 (q_f)과 모재내의 열유속 (q_m)은 각각 다음 식으로 표현된다.

$$q_f = -K_f(\nabla T^o + \nabla \bar{T} + \nabla T) = -K_m(\nabla T^o + \nabla \bar{T} + \nabla T - \nabla T^*) \quad (1)$$

$$q_m = -K_m(\nabla T^o + \nabla \bar{T}) \quad (2)$$

여기서 K 는 열전도계수, ∇T^o 충전재가 없을 경우 인가 열유속에 의해 발생하는 모재내의 균일 온도구배, $\nabla \bar{T}$ 는 모재 영역의 충전재에 의한 교란 온도구배의 평균, ∇T 는 충전재 내의 교란 온도구배, ∇T^* 는 Eshelby의 등가개재물법에 의해 발생하는 등가 고유온도구배로 계산될 값이다. q^o 와 ∇T^o 는 충전재가 없을 경우 모재의 열유속과 온도구배를 나타내는 것으로 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$q^o = -K_m \nabla T^o \quad (3)$$

열유속의 교란치를 복합재 전 체적에 대해 적분하면 0이 되어야하므로, 식(1)~(3)으로부터

$$\nabla \bar{T} + f(\nabla T - \nabla T^*) = 0 \quad (4)$$

여기서 f 는 복합재 속에 존재하는 충전재의 체적비를 나타낸다.

∇T , ∇T^* , 그리고 충전재의 형상에 의해 결정되는 Eshelby 텐서 S 사이에는 다음 관계가 존재한다.

$$\nabla T = S \nabla T^* \quad (5)$$

식(1) 및 (3)~(5)를 이용하면, 등가 고유온도구배는 다음 식으로 계산된다.

$$\nabla T^* = A(K_m - K_f) \nabla T^o \quad (6)$$

여기서

$$A = \{ (K_f - K_m)[(1-f)S + fI] + K_m \}^{-1} \quad (7)$$

이고, I 는 3×3 단위행렬이다.

모재와 충전재의 총 온도 구배를 각각 ∇T_m 및 ∇T_f 라 하면 다음 식으로 표시된다.

$$\nabla T_m = \nabla T^o + \nabla \bar{T} \quad (8)$$

$$\nabla T_f = \nabla T^o + \nabla \bar{T} + \nabla T \quad (9)$$

따라서 열유속 인가시 복합재의 총 온도구배는 복합재의 체적 적분에 의해 다음 식으로 표시된다.

$$\nabla T_c = (1-f)\nabla T_m + f\nabla T_f = \nabla T^o + f\nabla T^* \quad (10)$$

Fig. 1에 보인 복합재의 열유속과 온도구배사이에는 다음과 같은 관계를 갖는다.

$$q_c = -K_c \nabla T_c = q^o \quad (11)$$

따라서 복합재의 열전도계수는 다음 식으로 표현된다.

$$K_c = K_m [I + fA(K_m - K_f)]^{-1} \quad (12)$$

행렬 K_m , K_f , A 는 모두 대각행렬이므로 행렬 A 의 원소 A_{33} 는 다음과 같다.

$$A_{33} = \frac{1}{(k_f - k_m)[(1-f)S_{33} + f] + k_m} \quad (13)$$

식(13)을 식(12)에 대입하여 일반적인 형상의 충전재에 대해 복합재의 x_3 방향의 열전도계수를 구하면 다음 식으로 표시된다.

$$k_c = \left[1 + \frac{f(k_f - k_m)}{(1-f)S_{33}(k_f - k_m) + k_m} \right] k_m \quad (14)$$

여기서 S_{33} 은 x_3 방향의 Eshelby 텐서의 성분을 나타내며, 이는 충전재의 장단비의 함수이다.

실제 복합재에 포함되는 입자형 충전재도 일반적으로 완전한 구형이 아니라 장단비가 분포됨이 알려져 있다. 위에서 유도된 Eshelby 모델은 일정한 장단비를 갖는 복합재의 열전도계수를 잘 예측하는 것으로 알려져 있으나, 장단비 분포를 갖는 복합재에 대해서는 구체적으로 진행된 연구가 없다. 이러한 현상을 해석하기 위해 Eshelby 모델로 유도된 식(14)로 계산된 각 층의 열전도계수와 적층이론을 사용한다. Fig. 2에 보인 것과 같이 복합재를 여러 개의 층으로 나누고, 각 층은 일정한 장단비를 갖는 충전재가 포함되어 있다. 이러한 적층이론을 사용하여 충전재의 장단비 효과를 조사한 유일한 연구는 Fu와 Mai에¹²⁾ 의해 수행된 것으로 하나의 층의 열전도계수는 Halpin-Tsai의 식과 Nielsen 모델을 이용하여 계산하였다. 본 연구에서는 식(14)와 적층

이론을 사용하여 장단비 분포를 갖는 복합재의 열전도계수를 다음과 같이 간단한 식으로 표현된다.

$$k_c = \sum_{j=1}^N k_{c,j} h_j \quad (15)$$

여기서, $k_{c,j}$ 와 h_j 는 각각 식(14)로 구한 j 층의 열전도계수와 복합재의 총 두께에 대한 j 층의 두께비를 나타내며, N 은 적층되는 층의 총 수이다.

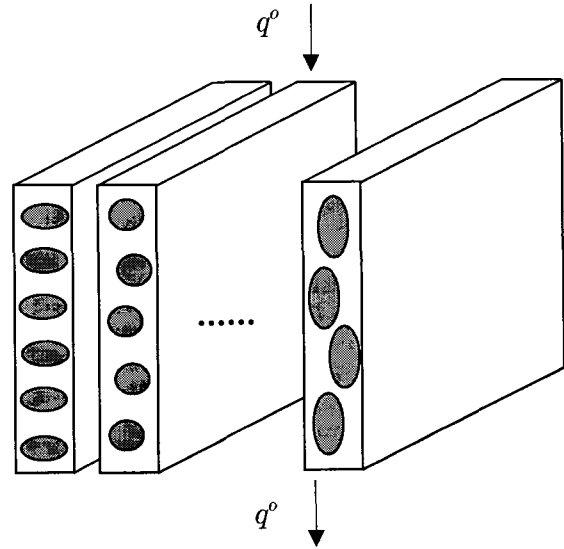


Fig. 2 Representation of composite as a laminated composite, where each lamina has constant thickness and aspect ratio.

3. 결과 및 검토

결과검토를 위해 실리카 (Silica), 알루미나 (alumina), 질화알루미늄(aluminum nitride, AlN)로 강화된 폴리머 복합재의 실험 결과를 참고문헌으로부터 인용하였다.¹¹⁾ 모재와 각 충전재의 열전도계수는 각각 0.195, 1.5, 36, 220W/mK이다. Wong 과 Bollampally는 사용된 충전재의 미세구조를 주사전자현미경(SEM)으로 연구하여, 실리카는 완전한 구 형태이고, 알루미나는 질화알루미늄보다는 구 형태에 가깝고, 질화알루미늄은 가장 불규칙적인 입자형태임을 관찰하였다.

먼저 모델의 타당성을 검토하기 위해 자기일치법과 본 모델로 계산한 복합재의 열전도계수를 비교하였다. 입자 강화 복합재에 대한 자기일치법으로^{7,8)} 구한 열전도계수는 다음과 같다.

$$k_c = \frac{2(1-f)k_m + (1+2f)k_f}{(2+f)k_m + (1-f)k_f} k_m \quad (16)$$

여기서 각 변수들의 정의는 2장에 보인 것과 동일하다. 식(14)에 구형 충전재에 대한 열전도 문제의 Eshelby 텐서 값 1/3을 대입하여 식(16)과 비교하면, 두 식이 완전히 일치함을 알 수 있다. 다음으로 참고문헌으로부터 인용된 복합재의 열전도계수 측정치와 Eshelby 모델로 예측한 복합재의 열전도계수가 체적비의 함수로 Fig. 3에 비교되었다. 완전 구 형태인 실리카가 충전재로 사용된 복합재의 측정된 열전도계수와 모델로 예측된 열전도계수는 충전재의 체적비에 관계없이 아주 잘 일치함을 알 수 있다. 그러나 알루미늄과 질화알루미늄으로 충전재로 사용한 복합재의 경우는 실험 결과와 예측 결과에는 상당한 차이가 있음을 알 수 있다. 이는 두 충전재가 완전한 구 형태와는 다른 형상을 가지므로 오차가 발생하는 것으로 추정되며, 또 오차의 크기는 충전재가 구 형태와 달라질수록 더욱 증가함을 알 수 있다.

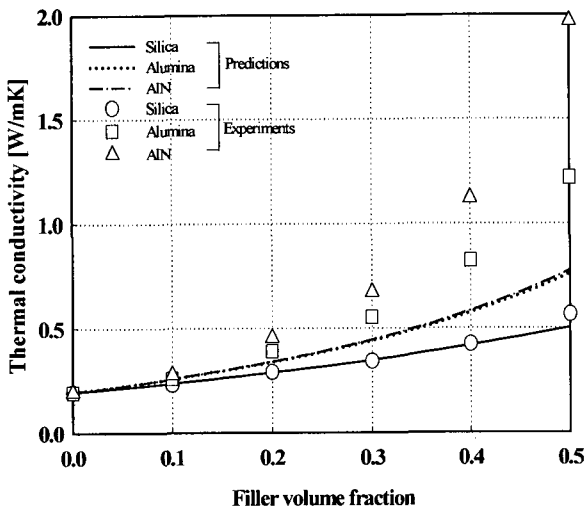


Fig. 3 Comparison of thermal conductivities of composites between experimental and predicted results as a function of filler volume fraction

이의 규명을 위해 충전재의 장단비에 따른 복합재의 열전도계수를 2장에 제시된 Eshelby 모델로 예측하였으며, 이 결과는 Fig. 4에 보인다. 모재는 Fig. 3에 사용된 것과 동일하고, 충전재는 알루미늄과 질화알루미늄이 사용되었으며, 충전재의 체적비는 30%이다. 장단비가 1보다 큰 타원체인 경우는

장축이 x_3 축과 일치하고, 장단비가 1보다 작은 타원체인 경우는 단축이 x_3 축과 일치한다. Fig. 4에 의하면, 복합재의 열전도계수는 충전재의 장단비에 큰 영향을 받는 것을 알 수 있다. Geni는¹³⁾ 탄화규소(SiC) 입자로 강화된 알루미늄 복합재에서 파괴된 표면에서 입자들의 장단비 분포를 연구하였다. 이 결과 장단비는 0.25에서 4 사이에 대부분이 분포되는 것으로 알려졌다. 이와 같이 입자형의 충전재의 형상은 구와는 상당히 다른 형상을 갖기 때문에 실제 장단비의 값을 사용하여 복합재의 열전도계수를 예측해야함을 알 수 있다. Fig. 3과 Fig. 4로부터 알루미늄과 질화알루미늄의 체적비가 30%일 때의 복합재의 실험 및 예측 열전도계수를 일치시키기 위한 충전재의 장단비를 역으로 추정하였으며, 결과 각 충전재의 장단비로 1.6과 2.1이 선택되었다. 이 값은 Geni에 의해 측정된 평균 장단비 1.77과 비슷한 값을 갖는다.

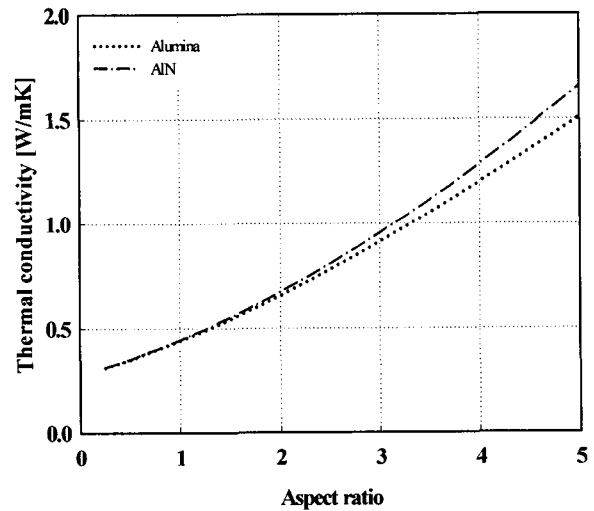


Fig. 4 Predicted thermal conductivities of composites with either alumina or alumina nitride(AlN) of $f=30\%$ as a function of aspect ratio

위에서 결정된 충전재의 장단비를 사용하여 문헌에서 인용된 복합재의 열전도계수 실험치를 2장에 제시된 모델로 예측한 결과와 비교하였으며, 이는 Fig. 5에 보인다. 구형과 크게 다르지 않는 알루미늄으로 보강된 복합재의 경우 선정된 장단비로 예측된 결과와 실험결과는 체적비와 관계없이 잘 일치함을 보인다. 그러나 구형으로부터 크게 벗어난 질화알루미늄으로 보강된 복합재의 열전도계수는 체적비 약 40%까지는 잘 일치하지만, 체적비가 증가될수록 오

차는 급격히 증가됨을 알 수 있다. Lee등에¹⁴⁾ 의해 체적비와 장단비가 증가함에 따라 충전제간의 연결(bridge)이 쉽게 형성되어 열전도망(conductive network)을 쉽게 형성하는 것으로 알려져 있다. 전도성 충전제 사이에 형성되는 이러한 망은 전자와 양자의 전달을 용이하게 하여 높은 열전도성을 얻게 하기 때문이다. 따라서 Eshelby 모델을 이용하여 열전도계수를 예측하기 위해서는 충전제의 장단비에 따른 체적비의 상한이 존재함을 알 수 있다. 본 연구에 사용된 모델 복합재의 경우는 체적비 약 40%까지 적용할 수 있음을 보인다.

장단비는 0.25로 고정하고 최대 장단비를 3, 3.5 및 4에 대해 본 모델로 열전도계수를 예측하였다. 최대 장단비 3~3.5를 사용하여 예측된 결과가 체적비 약 50%까지 실험결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 이는 Wong 과 Bollampally에¹¹⁾ 의해 관찰되었듯이 알루미늄의 경우 질화알루미늄보다 구 형태에 보다 가깝다는 결과와 일치하는 결과를 보여준다. 식(14)에 보인 것과 같이 복합재의 열전도계수는 장단비에 따라 비선형적으로 변하기 때문에 장단비의 분포가 큰 복합재의 경우 평균 장단비가 사용되는 Eshelby 모델보다는 Eshelby 모델과 결합된 적층이론을 적용하는 것이 추천된다.

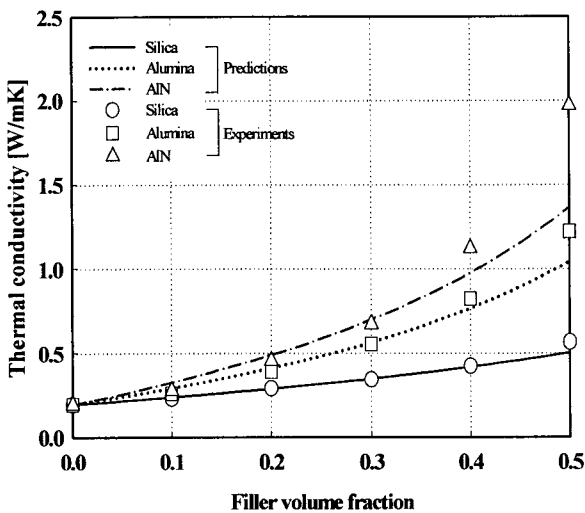


Fig. 5 Comparison of thermal conductivities of composite between experimental and predicted results as a function of filler volume fraction by using the filler aspect ratios determined from Fig. 3 and Fig. 4.

Eshelby 모델로부터 계산된 각 층의 열전도 계수와 적층이론을 사용하여 예측되는 복합재의 열전도 계수와 실험결과를 비교한다. 적층이론을 사용할 때 충전제는 Geni에¹³⁾ 의해 측정된 입자강화 복합재의 장단비 분포인 0.25~4를 갖는 것으로 가정하고, 각 층에 포함되는 충전제의 체적비는 균일한 것으로 가정한다. 본 논문에서 제시된 모델로 예측한 열전도계수와 실험 결과를 Fig. 6에 보인다. 여기서, 완전한 구형상인 실리카를 충전제로 사용한 복합재는 제외하였다. Geni에 의해 제시된 장단비 분포를 사용하여 예측된 질화알루미늄 강화 복합재의 열전도계수는 체적비 약40%까지 잘 일치함을 알 수 있다. 알루미늄을 충전제로 사용한 복합재의 경우는 최소

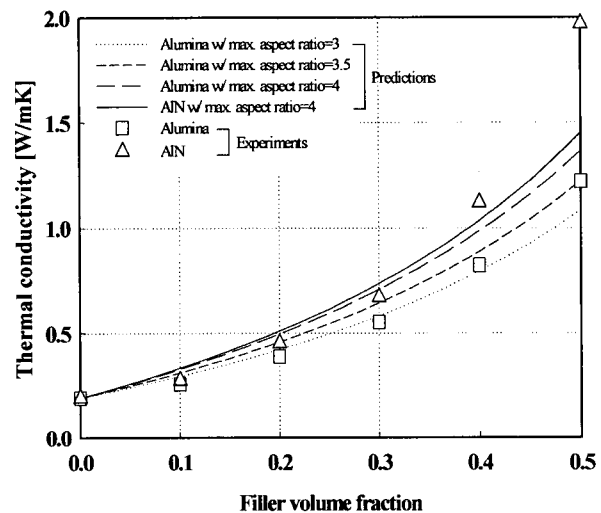


Fig. 6 Comparison of thermal conductivities of composite between experimental and predicted results as a function of filler volume fraction, where the lamination theory combined with Eshelby type model is used..

4. 결 론

입자강화 복합재의 열전도계수를 예측할 때 입자가 완전한 구형태일 때는 Eshelby 모델은 자기일치법과 동일하게 정확히 예측됨을 해석결과와 실험결과를 비교하여 알 수 있었다. 그러나 입자의 형태가 구형으로부터 멀어질수록 예측된 값과 실측값은 큰 오차를 보인다. 이러한 오차요인을 보정하기 위해서는 실제 입자의 모양을 타원체의 형태로 모델링 함으로써 정확히 열전도계수를 예측할 수 있음을 보였다. 체적비 약40%까지는 Eshelby 모델 및 Eshelby 모델과 적층이론을 결합한 모델로 복합재

의 열전도계수를 예측하는 것이 가능하나, 그 이상에서는 복합재내에서 충전재의 열전도망의 형성 가능성이 높아져 예측 오차는 증가하기 때문에 적용이 곤란함을 알 수 있다.

참고 문헌

1. J.D. Eshelby, 1957, "The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems", Proc. of the Royal Society of London, Vol. A241, pp. 376-396.
2. T. Mori and K. Tanaka, 1973, "Average stress in the matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions", Acta Metallurgica, Vol. 21, pp. 571-574.
3. H. Hatta and M. Taya, 1985, "Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite", J of Applied Physics, Vol. 58, No. 7, pp. 2478-2486.
4. H. Hatta and M. Taya, 1986, "Equivalent inclusion method for steady state heat conduction in composites", Int. J. Engineering Science, Vol. 24, No. 7, pp. 1159-1172.
5. C.H. Chen and Y.C. Wang, 1996, "Effective thermal conductivity of misoriented short-fiber reinforced thermoplastics", Mechanics of Materials, Vol. 23, pp. 217-228.
6. S.Y. Lu, 1998, "Effective conductivities of aligned spheroid dispersions estimated by an equivalent inclusion method", Journal of Applied Physics, Vol. 84, No. 5, pp. 2647-2655
7. T. Miloh and Y. Benveniste, 1988, "A generalized self-consistent method for the effective conductivity of composites with ellipsoidal inclusions and cracked bodies", J. of Applied Physics, Vol. 63, No. 3, pp. 789-796.
8. J.D. Felske, 2004, "Effective thermal conductivity of composite spheres in a continuous medium with contact resistance", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 47, pp. 3453-3461.
9. Y.M. Lee, R.B. Yang and S.S. Gau, 2006, "A generalized self-consistent method for calculation of effective thermal conductivity of composites with interfacial contact conductance", International Communications in Heat and Mass Transfer, Vol. 33, pp. 142-150.
10. 이진희, 이봉래, 1994, "균질화기법을 이용한 복합재료의 등가 열전달계수의 계산", 대한기계학회논문집, Vol. 18, No. 5, pp. 1245-1252.
11. C.P. Wong and R.S. Bollampally, 1999, "Thermal conductivity, elastic modulus, and coefficient of thermal expansion of polymer composites filled with ceramic particles for electronic packaging", Journal of Applied Polymer Science, Vol. 74, pp. 3396-3403.
12. S.Y. Fu and Y.W. Mai, 2003, "Thermal conductivity of misaligned short fiber reinforced polymer composites", J. Applied Polymer Science, Vol. 88, pp. 1497-1505.
13. M. Geni and M. Kikuchi, 1998, "Damage analysis of aluminum matrix composite considering non-uniform distribution of SiC particles", Acta mater., Vol. 46, No. 9, pp. 3125-3133.
14. G.W. Lee et al., 2006, "Enhanced thermal conductivity of polymer composites filled with hybrid filler", Composites, Vol. A37, pp. 727-734.