

알킬화가 다중벽탄소나노튜브로 강인화된 에폭시수지의 계면 및 열전도도에 미치는 영향

허건영 · 이경엽* · 박수진†

인하대학교 화학과, *경희대학교 기계공학과
(2011년 4월 11일 접수, 2011년 5월 27일 수정, 2011년 6월 8일 채택)

Influence of Alkylation on Interface and Thermal Conductivity of Multi-walled Carbon Nanotubes-reinforced Epoxy Resin

Gun-Young Heo, Kyong-Yop Rhee*, and Soo-Jin Park†

Department of Chemistry, Inha University, 253 Nam-gu, Incheon 402–751, Korea

*School of Mechanical and Industrial System Engineering,

Kyunghee University, Yongin 449–701, Korea

(Received April 11, 2011; Revised May 27, 2011; Accepted June 8, 2011)

초록: 본 연구에서는 기능화된 다중벽탄소나노튜브를 준비하기 위해서 두 가지 기능화 방법인 산처리와 화학적 아미드화 방법이 수행되었다. 그리고 에폭시/기능화된 다중벽탄소나노튜브 복합재료의 특성이 연구되고 비교되었다. 기능화 방법에 따른 다중벽탄소나노튜브의 표면 관능기를 확인하기 위해 푸리에 변환 적외선 분광기(FITR)를 사용하였다. 계면 및 열전도도에 미치는 다중벽탄소나노튜브 기능화의 효과는 제타전위차 분석기, 전자주사현미경 그리고 열전도도 분석기에 의해서 연구되었다. 이러한 결과들로 에폭시/기능화된 다중벽탄소나노튜브 복합재료의 열전도도는 dodecylamine과의 그래프팅을 통해 증가될 수 있다는 것을 알 수 있었다. 이것은 DGEBF 에폭시 수지 내에서 dodecylamine과 그래프팅한 다중벽탄소나노튜브의 상대적으로 강한 분산력에 의한 것으로 설명될 수 있었다. 이러한 결과들은 그래프팅한 다중벽탄소나노튜브의 제타전위차 값이 산처리한 다중벽탄소나노튜브의 값보다 더 높은 음의 값을 가지는 결과와 일치하였다.

Abstract: Two functionalization methods, i.e., acid treatment and chemical amidation were performed to prepare the functionalized multi-walled carbon nanotubes (MWCNT), and the properties of epoxy/functionalized MWCNT composites were investigated and compared. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) was used to confirm the surface functionality of the MWCNT obtained by the functionalization methods. The effects of the MWCNT functionalization on the interface and thermal conductivity were studied by zeta potential analyzer, scanning electron microscope and thermal conductivity analyzer. From these results, it was confirmed that the thermal conductivity of the epoxy/MWCNT composites could be increased by grafting with dodecylamine. This could be interpreted by relatively strong dispersion forces of the grafting MWCNT with dodecylamine in DGEBF epoxy resin. These results were in good agreement with the results that the zeta potential value of the grafting MWCNT with dodecylamine has a higher negative value than that of MWCNT with acid treatment.

Keywords: acid treatment, chemical amidation, functionalized multi-walled carbon nanotubes, interface, thermal conductivity.

서 론

최근 전자 산업의 급속한 발전으로 전자소자의 경향이 성능향상은 물론 경박단소의 형태로 진화하면서 패키징의 고집적화 기술이 필요하게 되었고 그로 인해 소자의 작동 시 열밀도 증가로 열을 효과적으로 방출해주는 문제가 중요한 이슈로 대두되었다. 패키징 소자에서 발생된

열은 소자의 성능을 떨어뜨릴 뿐 아니라 전자기기의 수명을 단축시키고 신뢰성을 저하시키는 문제를 낳기 때문에 대부분의 연구자들은 이를 해결할 수 있는 고방열성 재료의 개발에 초점을 두고 연구하고 있는 추세이다.^{1–5}

초기 방열재료로는 일반적인 열가소성 고분자가 사용되었으나 열가소성 고분자는 0.2 W/mK 이하의 낮은 열전도도를 가지고 있으며, 이와 같은 고분자는 고유특정상 열팽창계수(coefficient of thermal expansion; CTE)와 같은 열안정성이 떨어지기 때문에 열전도도를 높

†To whom correspondence should be addressed.
E-mail: sjpark@inha.ac.kr

이기 위한 방법으로 열전도도가 높은 금속이나 세라믹 충전제들을 첨가하는 연구가 오래 전부터 진행되고 사용되어져 왔다. 주로 사용된 충전제로는 silicon carbide (SiC), aluminum nitride (AlN), boron nitride (BN) 등과 같은 세라믹 필러를 사용하였으나 열전도도 향상을 위해서는 고품량을 사용해야 하는 등의 단점 때문에 대체 필러들의 필요성이 대두되게 되었고 새로운 필러의 개발을 위한 연구가 진행되고 있다.⁶⁻¹⁰

기존 세라믹 필러의 특성상의 단점을 극복할 수 있는 대체재료의 하나로서 카본재료들이 제시되었고, 탄소재료 중 가장 일반적인 흑연과 카본블랙이 초기에 널리 사용되었다. 그러나 그러한 흑연과 카본블랙 재료들의 경우 기저면에서 탄소의 sp² 결합은 다른 어떤 결합보다 단단한 결합이지만, 면간 사이의 결합은 매우 약한 결합을 가지고 있기 때문에 그 구조의 불완전성으로 인해 면 방향으로는 우수한 전기전도도와 열전도도를 갖는 반면, 면의 수직 방향으로는 전도 특성이 저하되는 등의 단점을 가지고 있었다. 따라서 이러한 문제점을 극복하기 위해 탄소나노튜브(carbon nanotubes)와 같은 sp² 결합 구조로 이루어진 재료들이 개발되기에 이르렀다.¹¹⁻¹³

탄소의 sp² 결합만으로 이루어진 이 탄소나노튜브는 1991년 Iijima에¹⁴ 의해 발견된 이후 우수한 유연성과, 낮은 벌크밀도, 큰 종횡비(300~1000) 특성 등으로 인해 높은 전기전도도와 열전도도를 가지기 때문에 다양한 분야에서 연구되어 왔고 특히 고분자 방열 나노복합재료의 충전제로 사용되어 왔다. 탄소나노튜브는 1차원적인 구조를 가지고 있어 긴 포논자유경로를 가지고 있기 때문에 단일벽나노튜브(single-wall carbon nanotube, SWNT)의 경우 약 6000 W/mK 이상, 다중벽탄소나노튜브(multi-wall carbon nanotube, MWCNT)의 경우 약 3000 W/mK의 높은 열전도도를 가지는 것으로 알려져 있다.¹⁵ 따라서 탄소나노튜브는 기존의 열전도도 충전제들을 대체할 수 있는 가장 강력한 재료로 여겨져 왔으며, 한 가닥의 탄소나노튜브로 존재할 때의 매우 높은 열전도 성질을 이용하여 열전도성이 우수한 고분자 복합재료를 개발하기 위한 많은 연구가 진행되어 왔다. 하지만 한 가닥의 탄소나노튜브가 매우 높은 열전도도를 가지는데 비해 고분자 기체 내에 분산하여 복합재료화하면 대부분의 경우 탄소나노튜브의 분산력 저하와 엉킴 상태로 인해 혼합법칙에 의한 예상값보다 훨씬 낮은 열전도도 증가를 야기해 이 엉킴을 줄이기 위한 탄소나노튜브의 기능화와 같은 다양한 연구가 진행되고 있다.¹⁶⁻²⁰

한편 최근 고방열 탄소복합재료의 기제로 사용되는 고분자 수지는 열경화성 수지로 대표적으로 에폭시 수지를 들 수 있다. 이 에폭시 수지는 1940년대에 상품화가 된 이후 내열성, 절연성, 접착력 등의 우수한 물성으로 인해 코팅, 전자 및 접착제 분야 등의 산업 전반에 걸쳐 다양한 용도로 널리 사용되고 있다. 특히 가교 밀도와 점도의 조절이 용이할 뿐 아니라 합성과 개질이 비교적 쉽기 때문에 이 에폭시 수지는 방열소재의 고분자 기제로 많은 연구자들에게 널리 사용되고 연구되고 있으며, 대부분의 연구는 이 고분자 수지와 사용되는 필러와의 상용성을 향상시켜 열전도도와 같은 물성을 증진하는데 초점을 두고 있다.²¹⁻²⁵

고분자를 기제로 사용하는 방열 탄소재료에서의 열전도는 고분자 내 포논(phonon)의 진동에 의해 이루어지고, 결정 속 격자점을 중심으로 원자간의 상호작용에 의하여 발생하는 원자의 진동은 한 원자에 머무르지 않고 파로서 재료 내부를 이동하는 것으로 알려져 있다. 이때 고분자/탄소 복합재료의 내부에서 열전달을 방해하는 주요한 인자로는 포논-포논 산란, 경계면 산란, 고분자와 필러 사이의 계면에 의한 산란

등이기 때문에 열전도도를 높이기 위해서는 포논 산란을 최소화해야 한다. 고분자/탄소 복합재료의 내부에서 포논이 쉽게 이동되기 위해서는 열전달 경로가 중요한데 탄소 필러의 부피비, 정렬형태, 입자크기, 종횡비 뿐 아니라 고분자 기체 내의 분산력 등이 중요한 인자로 알려져 있다.²⁶⁻²⁸

따라서 본 연구에서는 탄소나노튜브를 고분자 기체 내에 분산하여 복합재료화할 때 고분자 기체와 탄소나노튜브 사이의 계면 그리고 탄소나노튜브와 탄소나노튜브 사이의 계면에서 발생하는 높은 열저항으로 인해 저하되는 열전도도를 줄이고 고분자/탄소 복합재료의 방열 특성을 향상시키기 위해 탄소나노튜브의 표면에 아미드화 반응을 통해 관능기를 도입하고 그에 따른 분산력, 계면특성 그리고 열전도 특성을 고찰하였다.

실 험

재료. 에폭시 수지는 국도화학의 diglycidylether of bisphenol F (DGEBF, (주)국도화학: YDF-170)를, 경화제로는 2-ethyl 4-methyl imidazole (Shikoku Chem. Corp. Japan: 2E4MZ)를 사용하였다. 각각의 화학 구조식은 Figure 1에 나타내었다. 탄소나노튜브의 기능화를 위해 사용된 탄소나노튜브는 다중벽탄소나노튜브(multi-wall carbon nanotube, MWCNT)로 (주)나노솔루션에서 구입하여 사용하였다. 이때 기능화를 위해 사용된 dodecylamine을 포함한 시약은 모두 특별한 정제 없이 Aldrich에서 구입한 것을 그대로 사용하였다.

MWCNT의 산처리 및 기능화. MWCNT의 산처리는 황산과 질산의 3 : 1 비율의 혼합물을 사용하여 40 °C에서 10시간 동안 분산시킨 후 반응물을 실온으로 식힌 후 무이온수를 이용하여 pH가 7이 될 때까지 세척과 감압을 반복하였다. 최종 감압 후 산화된 MWCNT (MWCNT-A)는 80 °C의 진공오븐에서 24시간 동안 건조하였다.

MWCNT의 dodecylamine을 사용한 기능화는 MWCNT-A 1 g에 dodecylamine 0.2 g을 에탄올 용매에 분산 80 °C에서 24시간 동안 교반시킨 후 에탄올로 세척하여 잔존물을 제거하는 방법으로 이루어졌으며, 최종 생성물 MWCNT-D는 진공오븐에서 건조한 후 사용하였다.

시편제조. MWCNT-A와 MWCNT-D를 각각 에폭시에 1 phr 첨가하여 이를 적당한 온도에서 교반시킨 다음 실온의 진공오븐에서 상온 감압 건조시켜 에폭시 내의 잔류 유기용매 및 기포 등을 제거하였다. 이 에폭시 혼합물들에 경화제로 2E4MZ를 에폭시 수지 대비 4 phr를 첨가하여 2차 교반한 후 몰드에 채운 후 대류오븐에서 110 °C(1시간), 140 °C(2시간), 170 °C(1시간)의 경화조건으로 시편을 제조하였다.

분석. 기능화에 따른 MWCNT-A와 MWCNT-D의 화학적 구조 변화를 확인하기 위해 적외선 영역(400~4000 cm⁻¹) 사이에서 나타

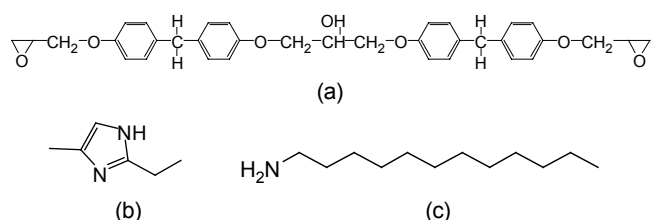


Figure 1. Chemical structures: (a) DGEBF; (b) 2-ethyl 4-methyl imidazole; (c) dodecylamine.

나는 흡수밴드를 측정하는 푸리에 변환 적외선 분광기(FTIR: Jasco 610 FTIR Spectrometer)를 사용하였다.

MWCNT-A와 MWCNT-D를 각각 1 phr을 첨가하고 잔류 유기 용매 및 기포 등을 제거한 에폭시 경화물을 시차주사 열량계(differential scanning calorimeter, DSC: model DSC 200, NETZSCH Instruments)를 사용하여 질소 분위기 하에서 승온 속도는 10 °C/min으로, 측정범위는 30~250 °C의 온도범위에서 실행하였다. 또한 MWCNT에 도입된 dodecylamine의 함량을 측정하기 위해서 열중량 분석기(thermogravimetric analysis, TGA: model TGA 209, NETZSCH Instruments)를 사용하여 DSC와 동일한 분위기와 승온속도로, 측정범위는 30~850 °C의 온도범위에서 실행하였다.

기능화에 따른 MWCNT-A와 MWCNT-D의 표면 거동과 표면 상호작용을 확인하기 위하여 제타전위차를 측정하였으며 이때 용매는 에탄올을, 사용된 장비는 ELS-Z analyzer(Otsuka Model, Otsuka Electronics Corporation)를 사용하였다.

MWCNT-A와 MWCNT-D를 혼합한 에폭시 복합재료 시편의 열전도도는 열전도도 분석기(LFA 447, NETZSCH Instruments)를 사용하였으며 3개 이상을 측정하여 평균값을 사용하였다.

이 레이저 플래시 분석(LFA)은 현재 복합재료의 열적 특성을 측정하는데 가장 널리 사용되고 있는 방법으로 측정 원리는 1961년 Parker²⁹ 등에 의해서 소개되었으며, 시료표면을 에너지 밀도가 균일한 Laser Flash로 가열하고, 시간에 따른 시료표면에서의 온도를 계속하여 시료 두께와 열의 확산에 필요한 시간으로부터 열확산계수를 산출하는 방식이다.^{29,30}

시편표면을 Laser Flash로 균일하게 가열하면, 시간에 따른 시편 배면에서의 온도상승은 간단하게 식 (1)로 표현할 수 있다.³¹

$$\frac{\Delta T}{\Delta T_{\max}} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \cdot \exp(-n^2 \pi^2 \alpha t d^{-2}) \quad (1)$$

여기서 α 와 d 는 열확산계수와 시편의 두께이며, ΔT 는 시간에 따른 시편 배면에서의 온도상승이고, ΔT_{\max} 는 시편 배면에서 온도상승의 최대치이다.

펄스가열 후 시편 배면에서의 온도상승(ΔT)이 최대치 ΔT_{\max} 의 1/2에 도달했을 때의 시간을 half time($t_{1/2}$)이라 하며, 열확산계수는 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\text{식 (1)에 } \omega = \frac{\pi^2}{d^2} \alpha t \text{ 를 대입하면}$$

$$\frac{\Delta T}{\Delta T_{\max}} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \cdot \exp(-n^2 \omega) \quad (2)$$

식 (2)에 있어서 시편 배면에서의 최대 온도 상승이 최대값(ΔT_{\max})의 1/2($\Delta T/\Delta T_{\max}=1/2$)에 도달할 때의 시간을 half time($t_{1/2}$)이라고 하면 ω 는 1.37이 되고 열확산계수는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\alpha = \frac{1.37 d^2}{\pi^2 t_{1/2}} = \frac{0.138785 d^2}{t_{1/2}} \quad (3)$$

따라서 열확산계수는 두께 d 와 시편 배면에서의 $t_{1/2}$ 을 측정함으로써 계산할 수 있으며 이 열확산계수와 시편의 밀도, 비열을 통해서 열전도도를 구할 수 있다.

시편의 형태학적 특성을 알아보기 위하여 파단면을 주사 전자 현미경(scanning electron microscopy, SEM, JEOL JXA 840A)을 사용하여 30000배의 배율로 관찰하였다.

결과 및 토론

본 연구에서는 MWCNT의 기능화 확인을 위하여 FTIR 측정을 실시하였으며 그 결과를 Figure 2에 나타내었다.

일반적으로 MWCNT의 산처리(carboxyl group)의 증가를 가져오는 것으로 알려져 있다.³² Figure 2에서 보는 바와 같이 1540과 3400 cm^{-1} 근처에서 특징적인 피크들이 나타나는 것을 확인할 수 있다. MWCNT-D에서 나타난 1540 cm^{-1} 근처의 신규 N-H, N-C 그리고 N-C=O 피크들은 산처리된 MWCNT-A에 dodecylamine 그래프트 시 생성된 $\text{COO}^- \text{NH}^+$ 에 기인한 피크들로 이로써 기능화가 잘 이루어졌음을 확인할 수 있다. 또한 3400 cm^{-1} 근처에서 OH 피크들 또한 dodecylamine 그래프트와 함께 감소되는 것을 확인할 수 있었다.

MWCNT의 도입된 dodecylamine의 함량을 정량화하고 기능화 확인을 위해 TGA 측정을 실시하였으며 그 결과를 Figure 3에 나타내었다.

Figure 3에서 보는 바와 같이 약 6 wt% 정도의 dodecylamine이 MWCNT-A에 도입된 것을 확인할 수 있었다.

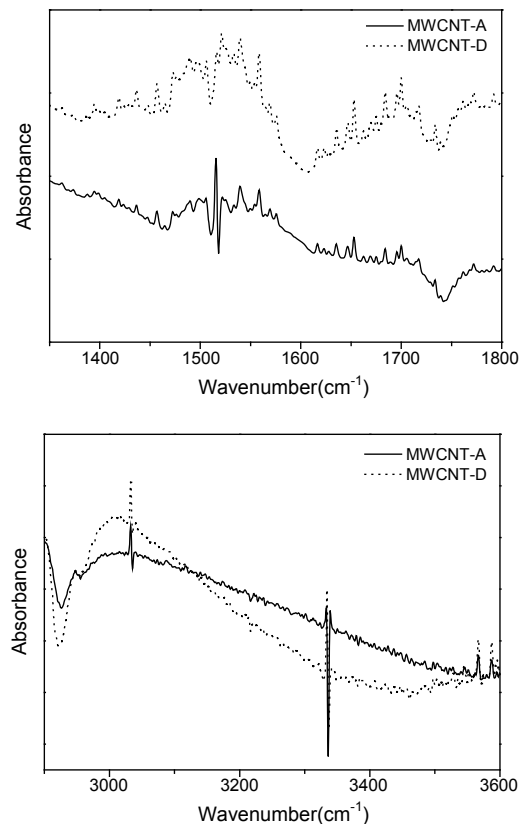


Figure 2. FTIR spectra of MWCNT-A and MWCNT-D.

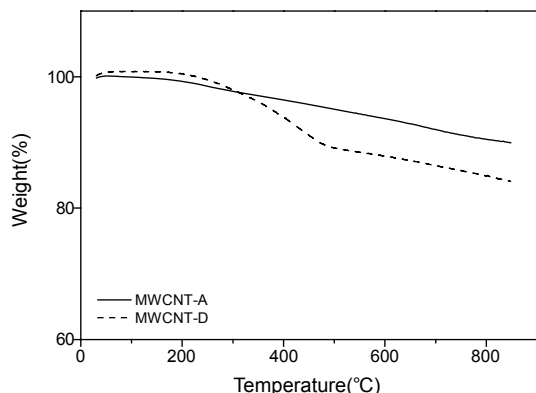


Figure 3. TGA thermograms of MWCNT-A and MWCNT-D.

Table 1. Zeta Potential Values of MWCNT-A and MWCNT-D

MWCNT	Zeta potential values (mV)
MWCNT-A	-55.03
MWCNT-D	-61.25

Table 2. Thermal Conductivity of Pure DGEBF, MWCNT-A and MWCNT-D

MWCNT	Thermal conductivity (W/(m·K))
Pure DGEBF	0.268 ± 0.002
MWCNT-A	0.291 ± 0.001
MWCNT-D	0.313 ± 0.001

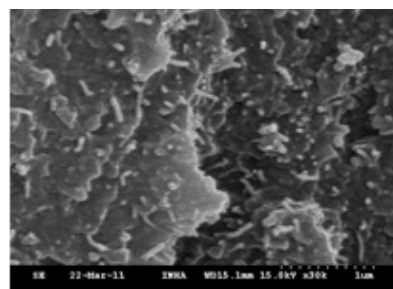
기능화에 따른 MWCNT-A와 MWCNT-D의 표면 거동과 표면 상호작용은 제타전위차 측정을 통해 확인하였고 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1에서 보는 바와 같이 MWCNT-D의 제타전위차 값이 MWCNT-A의 값보다 더 큰 음의 값을 가지는 것을 확인할 수 있었다. 이는 MWCNT-D에 도입된 관능기들이 기재 내에서 상호 반발력과 입체 장애적 효과를 야기하고 이는 MWCNT 응집력을 감소시키는 한편 분산력을 증가시키기 때문으로인 것으로 사료된다.

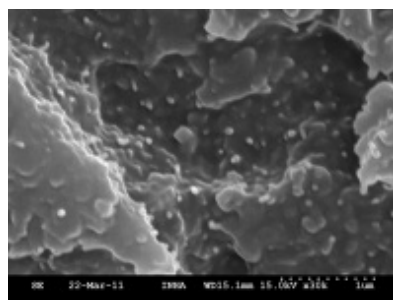
본 연구에서는 기능화된 MWCNT를 함유한 에폭시/MWCNT 복합재료의 열전도도를 평가하기 위하여 MWCNT를 첨가하지 않은 순수 에폭시 시편과 MWCNT-A와 MWCNT-D를 각각 1 phr 첨가한 에폭시 복합재료 시편의 열전도도를 비정상법의 대표적인 측정법인 레이저 플래시 분석(LFA)을 사용하여 측정하였다.

Table 2에 열전도도 분석기를 통해 구한 열전도도 값을 나타내었다. Table 2에서 보는 바와 같이 MWCNT 기능화에 관계없이 에폭시/MWCNT 복합재료의 열전도도 값이 에폭시 수지에 비해 상대적으로 높은 것을 확인할 수 있었으며, MWCNT 표면에 dodecylamine을 도입한 MWCNT-D의 열전도도 값이 MWCNT-A의 열전도도 값에 비해 더 높은 값을 가지는 것을 확인할 수 있었다.

MWCNT 기능화에 따른 에폭시 수지 내 분산성을 상세히 확인하기 위하여 주사전자현미경을 사용하였으며, 그 결과를 Figure 4에 나타내었다. Figure 4(a)는 MWCNT-A를 분산시킨 에폭시 수지의 파단면 이고, Figure 4(b)는 MWCNT-D를 분산시킨 에폭시 수지의 파단면이다. Figure 4에서 보는 바와 같이 MWCNT-A를 분산시킨 시편에



(a)



(b)

Figure 4. SEM images of MWCNT-A (a); MWCNT-D (b) in epoxy resin.

서는 MWCNT-D를 분산시킨 시편에 비해 다발의 응집 및 조밀한 분포가 관찰되었다.

결론

본 연구에서는 다중벽탄소나노튜브를 산처리한 후 표면에 아미드화 반응을 통해 관능기를 도입하고 그에 따른 분산력, 계면 특성 그리고 열전도 특성을 고찰하여 다음과 같은 결론들을 얻을 수 있었다.

MWCNT 표면에 도입한 dodecylamine은 에폭시 수지 내에서 상호 반발력과 입체 장애적 효과를 야기해 MWCNT의 응집력을 감소시키고 분산력을 증진시키는 한편 그로 인해 MWCNT가 고분자 내 고르게 분포해 고분자와 MWCNT 사이의 계면에 의한 포논산란이 감소하여 열전도도 특성을 향상시키는 것을 알 수 있었다. 이는 MWCNT-D의 제타전위차 값이 MWCNT-A의 값보다 더 큰 음의 값을 가지는 것과 SEM 이미지들로부터 확인할 수 있었다.

감사의 글: 이 논문은 중기청 미래선도지원사업의 지원에 의해 이루어진 것입니다.

참고 문헌

1. M. M. Schwartz, *Nanocomposites Materials Handbook*, 2nd ed., McGraw-Hill, New York, 1992.
2. I. Terasaki, *Comprehensive Semiconductor Science and Technology*, Chapter 1.09, 326 (2011).
3. P. C. Ma, N. A. Siddiqui, G. Marom, and J. K. Kim, *Composites Part A*, **41**, 1345 (2010).
4. A. Martone, C. Formicola, M. Giordano, and M. Zarrelli,

- Compos. Sci. Technol.*, **70**, 1154 (2010).
5. Y. Hou, L. Guo, and G. Wang, *J. Electroanal. Chem.*, **617**, 211 (2008).
 6. J. Hong, D. W. Park, and S. E. Shim, *Carbon Lett.*, **11**, 347 (2010).
 7. T. Zhou, X. Wang, X. Liu, and D. Xiong, *Carbon*, **48**, 1171 (2010).
 8. C. C. Teng, C. C. M. Ma, K. C. Chiou, T. M. Lee, and Y. F. Shih, *Mater. Chem. Phys.*, **126**, 722 (2011).
 9. N. J. S. Sohi, S. Bhadra, and D. Khastgir, *Carbon*, **49**, 1349 (2011).
 10. R. Nayak, D. P. Tarkes, and A. Satapathy, *Comput. Mater. Sci.*, **48**, 576 (2010).
 11. Y. S. Shim and S. J. Park, *Carbon Lett.*, **11**, 311 (2010).
 12. S. J. Park, K. M. Bae, and M. K. Seo, *J. Ind. Eng. Chem.*, **16**, 337 (2010).
 13. D. Y. Bae and H. S. Lee, *Carbon Lett.*, **11**, 83 (2010).
 14. S. Iijima, *Nature*, **354**, 56 (1991).
 15. T. Zhou, X. Wang, X. Liu, and D. Xiong, *Carbon*, **48**, 1171 (2010).
 16. J. S. Im, S. J. Kim, P. H. Kang, and Y. S. Lee, *J. Ind. Eng. Chem.*, **15**, 699 (2009).
 17. K. S. Kim and S. J. Park, *Carbon Lett.*, **11**, 102 (2010).
 18. S. H. Park and P. R. Bandaru, *Polymer*, **51**, 5071 (2010).
 19. M. V. Naseh, A. A. Khodadadi, Y. Mortazavi, F. Pourfayaz, O. Alizadeh, and M. Maghrebi, *Carbon*, **48**, 1369 (2010).
 20. K. Yang and M. Gu, *Composites Part A*, **41**, 215 (2010).
 21. S. K. Lee, B. C. Bai, J. S. Im, S. J. In, and Y. S. Lee, *J. Ind. Eng. Chem.*, **16**, 891 (2010).
 22. K. S. Kim, K. E. Choi, and S. J. Park, *Carbon Lett.*, **10**, 335 (2009).
 23. G. Y. Heo and S. J. Park, *Macromol. Res.*, **17**, 870 (2009).
 24. J. W. Shin, J. P. Jeun, and P. H. Kang, *J. Ind. Eng. Chem.*, **15**, 555 (2009).
 25. M. K. Seo, K. E. Choi, S. H. Park, Y. T. Hong, and S. J. Park, *Carbon Lett.*, **10**, 329 (2009).
 26. Z. Han and A. Fina, *Prog. Polym. Sci.*, **36**, 914 (2011).
 27. C. L. Choy, *Polymer*, **18**, 984 (1977).
 28. T. C. Clancy, S. J. V. Frankland, J. A. Hinkley, and T. S. Gates, *Int. J. Therm. Sci.*, **49**, 1555 (2010).
 29. W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbot, *J. Appl. Phys.*, **32**, 1679 (1961).
 30. M. Abdalla, D. Dean, M. Theodore, J. Fielding, E. Nyairo, and G. Price, *Polymer*, **51**, 1614 (2010).
 31. B. Y. Cao, Y. W. Li, J. Kong, H. Chen, Y. Xu, K. L. Yung, and A. Cai, *Polymer*, **52**, 1711 (2011).
 32. P. C. Ma, S. Y. Mo, B. Z. Tang, and J. K. Kim, *Carbon*, **48**, 1824 (2010).