

## 그래핀과 탄소나노튜브의 형상에 따른 나노유체의 열전도도 특성 비교 연구

### A Comparative Study on the Characteristics of Nanofluids to the Shape of Graphene and Carbon Nanotube

박성식\* · 한상필\*\* · 전용한\*\* · 김종윤\*\*\* · 김남진\*†

Park Sung-Seek\*, Han Sang-Pil\*\*, Jeon Yong-Han\*\*, Kim Jong-Yoon\*\*\*  
and Kim Nam-jin\*†

(Submit date: 2013. 5. 2. Judgment date: 2013. 5. 10. Publication decide date: 2013. 6. 24.)

**Abstract :** Recently, high-thermal-conductivity graphene and carbon nanotube nanoparticles have attracted particularly close attention from researchers. In the present study, the thermal conductivity and viscosity properties of two kinds of graphene and carbon nanotube nanofluids added to distilled water – two graphenes and carbon nanotubes of differing size – were compared and analyzed. The thermal conductivities of the nanofluids, formulated in the usual manner by adding graphene and carbon nanotube to distilled water and subjecting the mixture to ultrasonic dispersion, were measured by the transient hot-wire method, and the viscosities were determined using a rotational digital viscometer. As a result, we concluded that the nanofluid of small particle diameter of graphene have outstanding properties as heat transfer media, due to their excellent thermal conductivity and viscosity, compared with the other nanofluid.

**Key Words :** 그래핀(Graphene), 탄소나노튜브(Carbon nanotube), 나노유체(Nanofluids), 열전도도(Thermal conductivity), 점도(Viscosity)

\*† 김남진(교신저자) : 제주대학교 에너지공학과  
E-mail : jnkime@jejunu.ac.kr Tel : 064-754-3643  
\*박성식 : 제주대학교 에너지공학과  
\*\*한상필 : 상지영서대학교 소방안전과  
\*\*전용한 : 상지영서대학교 소방안전과  
\*\*\*김종윤 : 서정대학교 소방안전관리과

\*\*\*† Kim Nam-Jin(corresponding author) : Department of Nuclear & Energy Engineering, Jeju National University.  
E-mail : jnkim@jejunu.ac.kr, Tel : 064-754-3643  
\*Park Sung-Seek : Nuclear & Energy Engineering, Jeju National University  
\*\*Han Sang-Pil : Department of Protection and Safety, Sang Gi Young Seo College  
\*\*Jeon Yong-Han : Department of Protection and Safety, Sang Gi Young Seo College  
\*\*Kim Jong-Yoon : Department of Fire Safety Management, Seojeong College

## 1. 서론

최근 냉동 및 냉장, 열교환기, 고집적 전자 부품 냉각, 원전 및 각종 발전 시스템과 같은 다양한 산업에서 시스템의 효율 극대화와 발열량 제어가 중요한 문제로 대두되고 있다. 이에 따라 새로운 열전달 매체의 개발에 초점이 맞춰지고 있으며, 기본유체보다 우수한 열전달 특성을 나타내는 나노유체가 차세대 열전달 매체로 각광을 받고 있다.<sup>1)</sup> 특히, 획기적으로 높은 열전도도 특성을 나타내며, 나노과학기술의 발달로 인하여 대량생산이 가능하게 된 그래핀과 탄소나노튜브를 이용한 나노유체가 주목을 받고 있다.

그래핀은  $sp^2$  결합에 의해 2차원 상에서 탄소 원자 6개로 이루어진 육각형들이 벌집모양의 배열을 이루고 있는 원자 한 층을 명명하며, 탄소나노튜브는 이들 육각형들이 서로 연결되어 튜브 형상을 이루고 있는 것으로 그래핀을 말면 그래핀 끝 부분이 결합을 하여 튜브모양의 탄소나노튜브가 된다. 또한 그래핀과 탄소나노튜브는 구조적, 화학적으로 매우 안정하고 뛰어난 열전도도와 전도체로서의 특징을 갖고 있다고 보고되었다.<sup>1)2)3)4)</sup>

S. U. S. Choi et al.은 탄소나노튜브와 폴리에스테르 오일을 혼합하여 나노유체를 제조하고 열전도도를 측정하였으며, M. S. Liu et al.은 엔진오일에 탄소나노튜브를 첨가한 나노유체의 열전도도를 측정하였다. 이들은 공통적으로 기본유체에 첨가되는 탄소나노튜브의 양이 증가할수록 제조된 나노유체의 열전도도가 크게 증가하였다고 보고하였다.<sup>5)6)</sup>

또한 T. T. Baby는 열박편화로 제조된 그래핀과 증류수를 혼합하여 나노유체를 제조하고 열전도도를 측정하였으며, 25°C, 0.056 vol%에서 기본유체 대비 14%의 열전도도가 증가

함을 확인하였다.<sup>7)</sup> S. S. Gupta et al.은 온도에 따른 그래핀 나노유체의 열전도도를 측정하였고, 그래핀 나노유체의 열전도도 증가는 온도에 의존한다고 보고하였다.<sup>8)</sup> 특히, Wei Yu et al.은 에틸렌 글리콜을 기반으로 한 그래핀 나노유체의 열전도도를 체적비율에 따라 측정하였으며, 5.0 vol%에서 기본유체보다 86% 향상된 열전도도 특성을 확인하였다.<sup>9)</sup>

따라서 본 연구에서는 동일한 열전도도 특성을 가지고 있으나 형상이 다른 그래핀과 탄소나노튜브를 이용하여 나노유체를 제조하였다. 그리고 그래핀과 탄소나노튜브의 입자 크기, 체적비율에 따른 열전도도 및 점도 측정 실험을 수행하고, 그래핀과 탄소나노튜브 나노입자의 크기, 체적비율, 형상이 나노유체의 열전도도 및 점도에 미치는 영향에 대하여 비교분석하였다.

## 2. 실험장치 및 방법

### 2.1 그래핀과 탄소나노튜브 나노유체 제조

본 연구에서는 CVD(Chemical vapor deposition) 방법으로 제조된 두 종류의 다중벽 탄소나노튜브(Multi-wall carbon nanotube, MWCNT, Hanwha-nanotech Co.)와 두 종류의 그래핀(XG sciences Co.)을 사용하였고, 표 1에 본 연구에서 사용된 그래핀과 다중벽 탄소나노튜브의 자세한 물성치를 나타내었다. 표를 보면 알 수 있듯이 두 종류의 다중벽 탄소나노튜브는 길이만 다른 특성을 가지고 있으며, 그래핀은 입자 직경만 다른 특징을 가지고 있다. 또한 다중벽 탄소나노튜브와 그래핀은 같은 열전도도 특성을 가지고 있으며, 그림 1에 다중벽 탄소나노튜브와 그래핀의 SEM 사진을 나타내었다. 1차원 구조를 가진 다중벽 탄소나

노튜브는 가늘고 긴 튜브 형태의 모양을 하고 있으며, 2차원 구조를 가진 그래핀은 얇은 판 모양을 하고 있음을 볼 수 있다.

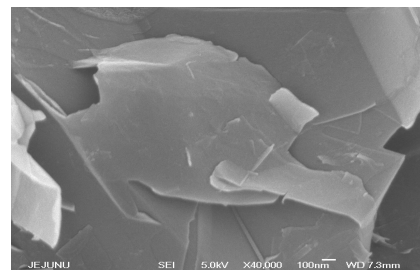
다중벽 탄소나노튜브와 그래핀과 같은 탄소 동소체 나노소재의 가장 큰 문제점은 흑연판 사이의 상호작용과 유사하게 입자와 입자간의 강한 반데르발스 인력으로 인하여 입자들이 유체 내에 분산이 잘 되지 않는다는 것이다. 따라서 단순히 탄소나노튜브와 그래핀 입자를 기본유체와 혼합해서는 나노입자들이 유체 내에 적절하게 분산되지 않으며, 높은 열적특성을 나타내는 나노유체의 특성이 잘 나타나지 않는다. 따라서 본 연구에서는 그래핀 나노유체의 분산 안정성 확보를 위하여 초음파 분산기를 이용하였다. 기본유체는 1차 증류수를 사용하였고, 그래핀 입자와 기본유체를 0.001 ~ 0.1 vol%의 비율로 각각 혼합하고, 2시간 동안 초음파 분산기로 분산하여 각각의 나노유체를 제조하였다.

## 2.2 열전도도 실험장치 및 방법

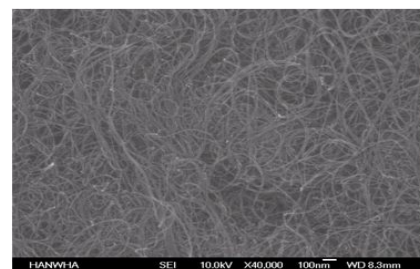
그림 2에 비정상 열선법을 이용한 나노유체 열전도도 측정 실험장치의 개략도를 나타내었다. 실험장치는 테프론으로 코팅된 직경 76  $\mu\text{m}$  백금선(R4, Nilaco Co., PT-967353)과 10  $\Omega$  (R2), 10 k $\Omega$ (R1)의 저항 그리고 10 k $\Omega$ 의 가변 저항(R3)으로 구성된 휘트스톤 브리지와 이 휘트스톤 브리지에 직류 전원을 공급해주기 위한 DC 파워 서플라이(Agilent Tech., E3648A) 그리고 수집되는 데이터의 저장과 모니터링을 위한 데이터 수집 장치(Agilent Tech., 34079A)와 컴퓨터로 구성되어 있다. 또한 항온수조(Jeio Tech., RW-3025G)를 이용하여 그래핀과 탄소나노튜브 나노유체의 온도를 실험온도(25 $^{\circ}\text{C}$ )로 일정하게 유지시켰다. 측정된 백금

Table. 1 Properties of graphene and MWCNT

Properties	MWCNT		Graphene	
	CM-95	CM-100	M-5	M-15
Diameter	10-15nm	10-15nm	5 $\mu\text{m}$	15 $\mu\text{m}$
Length( $\mu\text{m}$ )	10-20	-200	-	-
Thickness(nm)	-	-	6-8	6-8
Purity (wt.%)	95	95	99.5	99.5
Bulk Density( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	0.1	0.05	0.03-0.1	0.03-0.1
True density( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.8	1.8	2.2	2.2
Thermal Conductivity( $\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$ )	3000	3000	3000	3000
Surface Area( $\text{m}^2/\text{g}$ )	200	225	120-150	120-150



(a) Graphene



(b) MWCNT

Fig. 1 SEM images of graphene and MWCNT

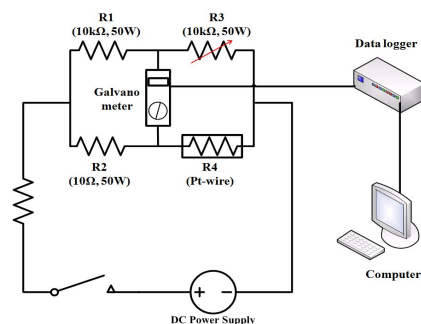


Fig. 2 Thermal conductivity experimental apparatus.

선의 저항은 Bently<sup>10)</sup>의 전기저항-온도에 관한 선형식과 온도-저항계수  $0.0039092/^\circ\text{C}$ 를 사용하여 측정된 백금선의 저항을 온도로 변환하였으며, 다음과 같은 식 (1)을 이용하여 각각의 나노유체의 열전도도를 최종적으로 계산하였다.<sup>11)</sup> 여기서,  $k$ 는 유체의 열전도도이며,  $T_1, T_2$ 는 각각 시간  $t_1, t_2$ 에서 측정된 백금선의 온도이다.

$$k = \frac{q}{4\pi(T_2 - T_1)} \ln\left(\frac{t_2}{t_1}\right) \quad (2)$$

또한 백금선 표면에 그래핀 입자가 달라붙어 열전도도가 잘 측정되지 않는 현상을 방지하기 위하여 매 실험마다 초음파 세척기를 사용하여 백금선을 충분히 세척하였다. 모든 실험은 유체의 실험온도를 일정하게 유지하여 실시하였고, 실험의 정확도와 신뢰성을 높이기 위하여 동일한 실험조건에서 10번의 반복 실험을 수행하였다. 측정된 결과는 동일 실험조건에서 측정된 기본유체의 열전도도와 비교하여 기본유체 대비 열전도도 증가비율로 나타내었다.

## 2.2 점도 실험장치 및 방법

본 연구에서 그래핀과 탄소나노튜브 나노유체의 점도는 회전형 디지털 점도계 DV II+pro를 이용하여 측정하였다. DV II+pro는 회전축의 회전수를 0 ~ 200 rpm까지 조절할 수 있고, 시료용액의 전단율을 일정하게 유지시킬 수 있기 때문에 뉴턴유체와 비 뉴턴유체의 측정에 모두 유용하다. 점도 측정 장치는 실험유체 내에서 회전하며 점도값을 검출하는 스피들(spindle), 실험유체의 온도를 제어하기 위한 항온수조 TC-502 그리고 측정된 데이터

를 모니터링하고 저장하기 위한 컴퓨터로 구성되어있다. 점도측정은 열전도도 실험과 비교를 하기 위해 실험유체의 온도를 모두 열전도도의 실험온도와 동일하게 유지하였다.

## 3. 실험결과

### 3.1 열전도도

본 연구에서는 비정상 열선법을 사용하여 탄소나노유체의 열전도도를 측정하였다. 그리고 CRC Handbook of Chemistry and Physics에 보고된 증류수의 열전도도 데이터와 본 실험 장치를 이용하여 측정된 증류수의 열전도도를 비교한 결과 1% 이내의 편차로 실험 데이터가 일치하였다.<sup>12)</sup>

그림 3은 길이가 다른 두 종류의 다중벽 탄소나노튜브를 이용하여 0.001-0.01 vol%의 비율로

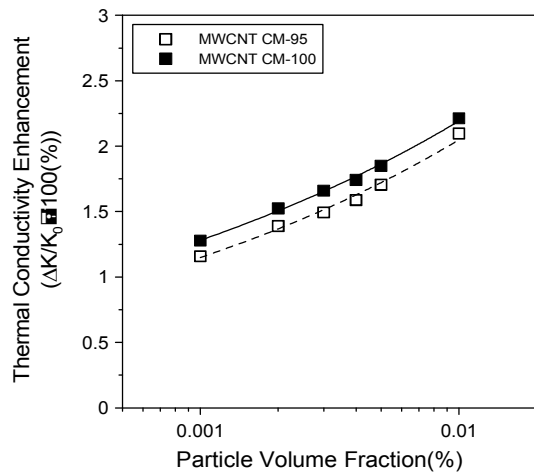


Fig. 3 Comparison of the thermal conductivity of MWCNT CM-95 and CM-100

제조한 나노유체의 열전도도를 비교하여 나타낸 그래프이다. 그림을 보면 알 수 있듯이 길이가 긴 CM-100 다중벽 탄소나노튜브를 이용

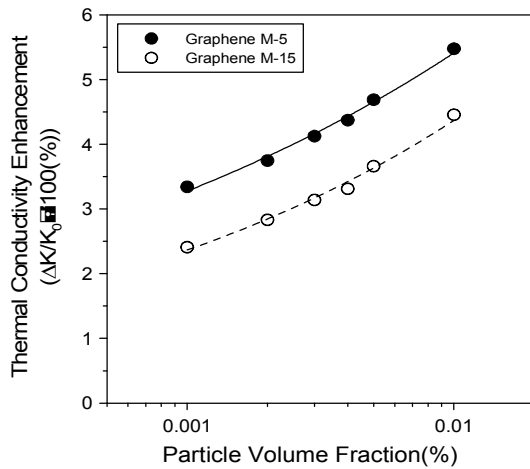


Fig. 4 Comparison of the thermal conductivity of graphene M-5 and M-15.

하여 제조한 나노유체의 열전도도가 높음을 알 수 있으며, 0.01 vol%에서 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 열전도도 증가율은 길이가 짧은 CM-95 다중벽 탄소나노튜브 나노유체보다 약 5.5% 높음을 알 수 있었다. 이는 탄소나노튜브의 길이가 나노유체의 열전도도에 영향을 미치며, 길이가 긴 탄소나노튜브가 효과가 좋다는 것을 의미한다.

그림 4는 입자 직경이 다른 그래핀 M-5와 M-15를 이용하여 제조한 그래핀 나노유체의 열전도도를 비교하여 나타낸 그래프이다. 그래핀의 경우 탄소나노튜브와는 다르게 평균 입자 직경이 작은 그래핀 M-5 입자를 이용한 나노유체의 열전도도가 높음을 보였다. 특히, 0.01 vol%에서 그래핀 M-5 나노유체의 열전도도 증가율은 그래핀 M-15 나노유체보다 약 23% 높았다. 이와 같은 결과는 그래핀의 직경이 그래핀 나노유체의 열전도도 증가율에 영향을 미치며, 직경이 작은 그래핀을 첨가한 그래핀 나노유체의 열전도도 효과가 더 좋다는 것을 의미하며, 그래핀을 이용한 나노유체의 열전도도는 탄소나노튜브를 이용한 나노유체보다 입자

의 크기에 큰 영향을 받는다는 것을 알 수 있다.

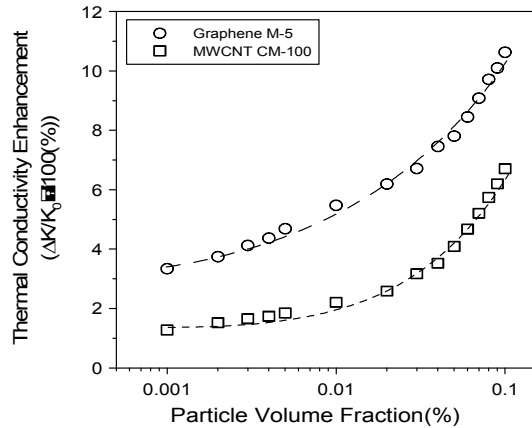


Fig. 5 Comparison of the thermal conductivity of graphene and MWCNT

그림 5는 각각의 나노유체에서 우수한 열전도도 효과를 나타낸 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체와 그래핀 M-5 나노유체의 열전도도를 입자의 첨가비율을 0.1 vol% 까지 증가시켜 나타낸 그래프이다. 그림을 보면 알 수 있듯이 그래핀 M-5 나노유체의 열전도도가 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체보다 높음을 알 수 있다. 또한 0.1 vol%에서 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 열전도도는 증류수 대비 6.71% 증가하였고, 그래핀 M-5 나노유체는 10.63% 증가하여 그래핀 나노유체가 탄소나노튜브 나노유체보다 약 1.6배의 높은 열전도도 증가효과를 나타냄을 확인하였다. 이와 같은 이유는 그래핀과 탄소나노튜브의 서로 다른 형상 때문이라고 사료된다. 나노입자의 형상은 나노유체의 열전도도 증가에 상당한 영향을 미치는 것으로 알려져 있기 때문에 이와 같은 결과는 2차원 구조를 가진 그래핀이 1차원 구조를 가진 다중벽 탄소나노튜브보다 직경과 길이의 비인 종횡비(aspect ratio)가

높기 때문인 것으로 판단된다.<sup>13)14)</sup>

### 3.2 점도

그림 6은 0.001 - 0.01 vol%의 비율로 제조한 두 종류의 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 점도를 비교하여 나타낸 그래프이다. 점도의 경우 열전도도 실험결과와는 다르게 입자의 길이가 짧은 CM-95 다중벽 탄소나노튜브를 이용한 나노유체가 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체보다 점도가 22.7% 낮아 열전달 매체로서 더 유리하다는 것을 알 수 있었다. 이는 CM-100 다중벽 탄소나노튜브의 입자의 길이가 CM-95보다 길기 때문인 것으로 판단된다. 이와 같은 실험결과로 나노유체에 첨가되는 탄소나노튜브 입자의 크기가 제조된 나노유체의 점도에 영향을 미친다는 것을 알 수 있다.

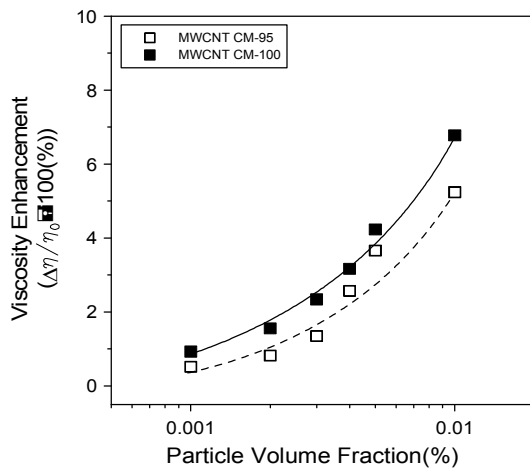


Fig. 6 Comparison of the viscosity of MWCNT CM-95 and CM-100

그림 7은 두 종류의 그래핀 나노유체의 점도를 비교하여 나타낸 그래프이다. 그림을 보면 알 수 있듯이 평균 입자 직경이 작은 그래핀 M-5 나노유체의 점도가 낮음을 알 수 있

다. 특히, 0.01 vol%에서 그래핀 M-5 나노유체의 점도 증가율은 평균 입자 직경이 큰 그래핀 M-15 나노유체보다 약 18.2% 낮음을 확인하였다. 따라서 그래핀 나노유체의 점도는 열전도도와 마찬가지로 입자의 크기에 큰 영향을 받는다는 것을 알 수 있었다. 점도가 높다는 것은 각종 시스템의 열전달 매체로서는 불리한 조건이기 때문에 이와 같은 실험결과는 입자 직경이 큰 그래핀보다 작은 그래핀을 첨가하여 제조한 나노유체의 열전도도 및 점도 특성이 훨씬 우수하다는 것을 나타낸다.

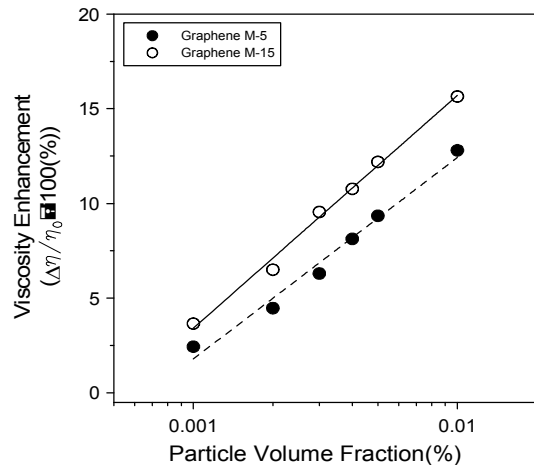


Fig. 7 Comparison of the viscosity of graphene M-5 and M-15.

그림 8은 그래핀 M-5와 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 입자의 첨가비율을 각각 0.1 vol%까지 증가시키고 측정된 나노유체의 점도를 비교하여 나타낸 그래프이다. 0.001 - 0.06 vol%까지는 그래핀 M-5 나노유체의 점도가 높았으나 0.07 vol% 이후에는 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 점도가 그래핀 M-5 나노유체보다 높음을 보였다. 이는 나노유체에 첨가되는 입자의 양의 증가할수록 유체 속에서 튜브형상을 가지고 있는

탄소나노튜브가 층 형상을 가지고 있는 그래핀보다 입자의 클러스터 형성정도가 크게 증가하기 때문인 것으로 판단된다.

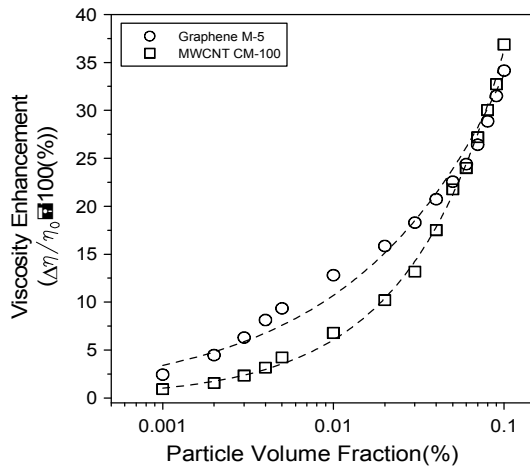


그림 8. Comparison of the viscosity of graphene and MWCNT

## 5. 결 론

본 연구에서 동일한 열전도도 특성을 가지고 있으나 형상이 다른 그래핀과 탄소나노튜브를 이용하여 제조한 나노유체의 열전도도 및 점도 특성을 비교분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 경우 길이가 긴 입자를 이용하였을 때 보다 높은 열전도도 효과를 나타냄을 알 수 있었으며, 그래핀 나노유체는 직경이 작은 입자를 이용하였을 때 보다 높은 열전도도 특성을 나타낸다는 것을 알 수 있었다.
- (2) 0.1 vol%에서 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 열전도도는 증류수 대비 6.71% 증가하였고, 그래핀 M-5 나노유체는 10.63% 증가하여 그래핀 나노유체가 탄소나노튜브 나노유체보다 약 1.6배의 높

- 은 열전도도 효과를 나타냄을 알 수 있었다.
- (3) 열전달 매체로 이용하기 위한 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 점도는 길이가 짧은 입자를 이용하였을 때 우수한 효과를 나타내었으며, 그래핀 나노유체도 마찬가지로 직경이 작은 입자를 이용하였을 때 훨씬 우수한 효과를 나타냄을 알 수 있었다.
- (4) 점도의 경우 0.001 - 0.06 vol%까지는 그래핀 M-5 나노유체의 점도가 높았으나 0.07 vol% 이후에는 CM-100 다중벽 탄소나노튜브 나노유체의 점도가 그래핀 M-5 나노유체보다 높음을 알 수 있었다.

## 후 기

이 논문은 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국과학재단의 지원을 받아 수행된 연구임.(NO. 2012029406)

## 참 고 문 헌

1. Das. S.K., Choi. S.U.S., Yu. W., Nanofluids Science and Technology, John Wiley & Sons, Inc., 2008.
2. Novoselov. K.S. et al., Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films, Science 306, 666, 2004.
3. Novoselov. K.S. et al., Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene, Nature 438, 197, 2005.
4. Geim. A.K. and Kim. P., Carbon wonderland, Scientific American, 298, pp. 90-97, 2008
5. Choi, S.U.S., Zhang, Z. G., Yu, W., Lockwood, F. E., Grulke, E. A., Anomalous thermal conductivity enhancement in nanotube suspensions, Applied Physics Letter, Vol.

- 79, NO. 14, pp. 2252-2254, 2001.
6. Liu, M.S., Lin, M. C., Huang, I. Te., Wang, C. C., "Enhancement of thermal conductivity with carbon nanotube for nanofluids", International Communications in Heat and Mass Transfer, Vol. 32, No. 9, pp. 1202-1210, 2005.
  7. Baby. T.T. and Ramaprabhu. S., Investigation of thermal and electrical conductivity of graphene based nanofluids, Journal of Applied Physics, 108, 124308, 2010.
  8. Gupta. S.S. et al., Thermal conductivity enhancement of nanofluids containing graphene nanosheets, Journal of Applied Physics, 110, 084302, 2011.
  9. Yu. W., Xie. H., Wang. X., Wang. X., Significant thermal conductivity enhancement for nanofluids containing graphene nanosheets, Physics Letters, 375 , 1323-1328, 2011.
  10. Bently, J.P., Temperature sensor characteristics and measurement system design, Journal of Physics E: Scientific Instruments, 1984, Vol. 17, pp. 430-435.
  11. Nagasaka, Y. and Nagashima, A., Absolute Measurement of the thermal conductivity of electrically conducting liquids by the transient hot-wire method, Journal of Physics E: Scientific Instruments, 1981, Vol. 14, pp. 1435-1440.
  12. Kim, N.J., Park, S.S., Lim, S.H., Chun, W.G., A study on the characteristics of carbon nanofluids at the room temperature, International Communications in Heat and Mass Transfer, Vol. 38, No. 3, pp. 313-318, 2011.
  13. Hamilton. R.L., Crosser. O.K., Thermal conductivity of heterogeneous two- component systems, Ind. Eng. Chem. Fundamen., Vol. 1, p. 187, 1962.
  14. Gao. L., Zhou. X.F., Differential effective medium theory for thermal conductivity in nanofluids, Physics Letters, Vol. 348, pp. 355-360, 2006.