



방열소재 응용을 위한 알루미나 분말 표면 위 탄소나노튜브의 직접 성장 거동 고찰

이종환, 한현호, 정구환*

강원대학교 대학원 신소재공학과

Investigation of direct growth behavior of carbon nanotubes on alumina powders to use as heat dissipation materials

Jong-Hwan Lee, Hyun-Ho Han and Goo-Hwan Jeong*

Department of Advanced Materials Science and Engineering, Graduate School of Kangwon National University, Chuncheon 24341, Republic of Korea

(Received 20 December, 2022 ; revised 09 January, 2023 ; accepted 09 January, 2023)

Abstract

As a preliminary study to produce functional nanocomposites in a heat dissipation device, we performed the direct synthesis of carbon nanotubes (CNTs) on the surface of alumina (Al_2O_3) powders. A thermal chemical vapor deposition (TCVD) system was used to grow CNTs directly on the Al_2O_3 surface. In order to investigate the growth behavior of CNTs, we varied both furnace temperature of the TCVD ranging from 700 to 850 °C and concentration of the ferritin-dissolved DI solution from 0.1 to 2.0 mg/mL. From the previous results, the gas composition and duration time for CNT growth were fixed as $\text{C}_2\text{H}_4 : \text{H}_2 = 30 : 500$ (vol. %) and 10 min, respectively. Based on the analysis results, the optimized growth temperature and ferritin concentration were found to be 825 °C and 0.5 mg/mL, respectively. The obtained results could be adopted to achieve mass production of nanocomposites with heat dissipation functionality.

Keywords : Direct growth; Carbon nanotubes; Alumina powder; Heat dissipation; Thermal chemical vapor deposition.

1. 서 론

최근 다양한 기능성 전자기기의 경박단소화 경향에 따라 동작 중 소자로부터 발생하는 열에 대한 관리(Thermal management)는 중요한 주제로 인식되고 있다. 소자로부터 방출되는 열은 직접적으로는 소자의 열화에 따른 수명 저하의 원인이 될 뿐만 아니라 집적된 주변 소자의 오작동의 원인이 되고 있기 때문이다. 이러한 문제의 근

본적 해결을 위해서는 열원(Heat source)으로부터 발생하는 열을 외부로 효과적으로 방출시킬 수 있는 높은 열전도성 물질을 이용하는 것이다. 이러한 배경 하에 열관리소재(Thermal interface materials, TIM)를 이용한 방열(Thermal dissipation) 소자에 대한 연구가 활발하게 이루어지고 있다[1,2].

방열을 위한 방법으로는 열전도성과 점착성이 우수한 얇은 방열 시트(Sheet)를 이용하는 방법이 주로 이용되고 있으며, 이 때 방열 시트와 열원 사이에 높은 열전도성 및 물리적 점착력을 유지하기 위해서 점착층(Adhesive layer)을 삽입하는 기술이 이용되고 있다. 현재 사용되고 있는 점

*Corresponding Author: Goo-Hwan Jeong
Department of Advanced Materials Science and Engineering, Kangwon National University
Tel: +82-33-250-6268 ; Fax: +82-33-259-5548
E-mail: ghjeong@kangwon.ac.kr

착제의 구성은 비교적 낮은 열전도도 특성(0.02 ~ 0.5 W/m·K)을 갖는 아크릴 및 우레탄 등의 고분자 기지(Matrix)에 금속 및 세라믹 입자를 충전재(Filler)로 사용해 왔으나, 열전도 특성의 향상을 위해서는 혼합량을 늘릴 수밖에 없다는 한계점에 이르고 있다[3-5].

대표적 나노소재인 탄소나노튜브(Carbon nanotubes, CNTs)는 1991년 S. Iijima 박사에 의해 처음 발견된 이후 높은 기계적, 열적, 전기적 성질로 인해서 다양한 분야로의 응용이 시도되고 있다. 특히 단일벽 탄소나노튜브(Single-walled CNTs, SWNTs)의 경우 6600 W/mW의 매우 높은 열 전도성이 보고되었으며, 다층벽 탄소나노튜브(Multi-walled CNTs, MWNTs)의 경우에도 10^3 W/m에 이르는 높은 열 전도성이 보고되고 있다[6-8]. 이와 더불어, 높은 종횡비(Aspect ratio)를 갖는 CNTs의 1차원적 구조 또한 고효율 방열소자의 충전재로 이용하고자 하는 주요 원인이 되었으며 많은 연구 결과들이 보고되었다[9-10].

탄소나노튜브를 고분자 기지에 금속 및 세라믹 충전재와 혼합하여 복합체로 사용하는 경우, 충전재들의 함량은 방열 복합체의 물성을 좌우하는 아주 중요한 변수가 된다. 특히 열전도성 점착제의 성능은 열적 절연체인 고분자 기지에 열전도성 충전재가 무작위로 혼합되어 결정되는 만큼 격자 침투 이론(Lattice percolation theory)을 고려하여 충전재의 함량을 결정하는 것이 필요하다[11]. 이에 더해, *sp*-2 결합에 의해 소수성(Hydrophobic property)을 나타내는 CNTs의 표면은 계면에서의 물리적 접착력 향상 및 CNTs의 균일 분산을 위해서 친수성(Hydrophilic property)으로의 표면 개질(Surface modification) 과정이 필요하나, 이러한 표면개질 공정은 산(Acid) 처리 및 분산제 등의 장시간 처리가 수반되기 때문에 CNTs의 구조적 품위(Structural integrity)를 저해하는 원인이 되기도 한다[12-14]. 따라서, 복합화 과정에서 어쩔 수 없이 발생하는 재료의 손상(Damage) 및 낮은 분산도 문제를 최소화 하면서 충전재의 우수한 특성을 유지시킬 수 있는 핵심 기술의 개발 또한 필요하다. 현재까지도 탄소나노소재의 표면처리를 통하여 복합재료의 충전재로 이용하고자 하는 많은 연구가 보고되고 있으며[15-17], 본 연구실도 CNTs를 고성능 방열 점착제의 충전재로 이용하기 위한 연구를 진행하여 세라믹 충전재와의 물리적 혼합 비율 및 CNTs 분산제 등의 영향에 대한 연구

결과를 보고하였다[18].

상기의 배경 하에, 본 연구에서는 CNTs가 세라믹 충전재 또는 고분자 기지와 형성하는 계면에서 높은 열전도성 및 기계적 안정성을 유지할 수 있는 고효율 방열소재를 개발하기 위한 초기 실험으로, 대표적인 세라믹 방열 충전재인 알루미늄 분말 표면에 CNTs를 직접 합성하고자 하였다. CNTs의 합성은 열화학기상증착법(Thermal chemical vapor deposition, TCVD)을 이용하였으며 주요 합성 변수로는 합성 온도 및 합성 촉매의 농도를 설정하여 알루미늄 분말 표면에서의 CNTs 합성 거동을 살펴보고자 하였다.

2. 실험방법

방열소재로 이용되고 있는 세라믹 충전재로서는 평균 직경 70 μm 의 알루미늄 분말(이영세라켄)을 이용하였고, CNT 합성에 필요한 촉매로는 직경 8 nm의 내부 공간에 Fe 화합물을 포함하고 있는 페리틴 단백질(Sigma Aldrich)을 이용하였다. 페리틴 단백질의 겹질은 하소(Calcination) 과정을 통하여 연소시켜서 제거할 수 있으며, 그 결과 Fe 나노입자를 얻을 수 있다[19]. Fe 합성 촉매의 밀도 변화에 따른 CNTs 합성거동을 살펴보기 위해 페리틴의 농도를 무 이온수(Deionized, DI, water)와 희석하여 0.1, 0.5, 1.0, 2.0 mg/mL로 변화를 주었다. 그 후 페리틴 용액과 Al_2O_3 분말을 1 mL : 1 g의 비로 혼합하여 분산한 뒤 혼합 용액 0.1 mL를 피펫을 이용하여 Si 산화막이 덮힌 실리콘 웨이퍼 위에 적하(drop)하였다. 이어서 80 °C의 hot plate 위에서 Ferritin- Al_2O_3 혼합물을 완전 건조한 후 TCVD 장비를 이용하여 CNTs 합성을 진행하였다 [그림 1(a)].

그림 1(b)는 CNTs 합성에 사용한 직경 2 인치, 길이 1 m의 켈츠 튜브를 이용한 수평형 TCVD 장치의 모식도이다. 합성단계의 전처리로서 CNTs의 합성수율 향상을 위하여 페리틴의 하소 및 환원처리를 실시하였다. 하소 처리는 550 °C 에서 10 분 동안 대기 분위기에서 실시하였고, 환원처리는 합성온도에서 아르곤(Ar, 500 sccm)과 수소(H_2 , 500 sccm)를 흘려주며 상압에서 10 분간 진행하였다. 이후 에틸렌(C_2H_4 , 30 sccm)과 수소(500 sccm)를 이용하여 10 분간 CNTs의 합성을 진행한 후 아르곤 분위기에서 상온까지 냉각하였다. 합성 시 주요한 공정 변수로서 합성온도에 따른

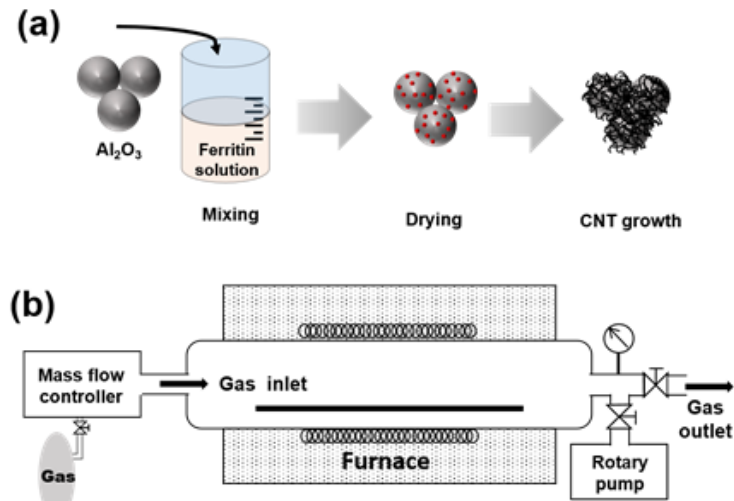


Fig. 1. Schematic presentations of (a) experimental procedure and (b) CVD system.

합성거동을 조사하기 위해 합성온도를 700, 750, 800, 825, 850 °C로 변화를 주어 실험을 진행하였다.

합성된 CNTs의 형상은 전계방출형 주사전자현미경(Field-emission type scanning electron microscopy, FE-SEM, Hitachi S-4800)과 투과전자현미경(transmission electron microscopy, TEM, JEM-2100F)을 이용하였으며, 광학적 특성평가에는 Raman scattering spectroscopy (Horiba Aramis, 532 nm laser)를 이용하였다. CNTs의 결정성 평가에는 Cu K α 선을 이용한 X선 회절분석기(X-ray diffraction, XRD, X'Pert PRO MPD)를 이용하였고, TEM 분석 시 X선 에너지분산형분광기(Energy Dispersive X-ray Spectroscopy, EDS)를 이용하여 합성 촉매의 성분 분석을 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 합성 온도에 따른 CNTs의 합성 결과를 SEM으로 관찰한 결과이다. 그림 2(a)는 합성 전 약 70 μ m의 직경을 갖는 Al₂O₃의 SEM 이미지이고, 그림 2(b)는 700 °C에서 합성한 결과이다. CNTs로 보이는 굵고 짧은 튜브 형상의 물질이 Al₂O₃ 표면에 불균일하게 성장된 것이 관찰되었다. 그림 2(c)와 2(d)는 750 °C에서 CNT를 합성한 CNTs/Al₂O₃의 SEM 이미지로서, 그림 2(c)에 나타나듯이 알루미늄의 표면이 합성 전과는 다르게 변화된 것을 알 수 있었고, 그림 2(d)에서 가늘고 긴 CNTs 형상의 물질이 낮은 수율이지만 표

면에 걸쳐 존재하는 것이 관찰되었다. 그림 2(e)는 800 °C에서 합성한 결과로서, 알루미늄 표면에 가늘고 긴 1차원 물질이 합성된 것을 알 수 있었으며, 고배율 SEM 이미지[그림 2(f)]에서는 전형적

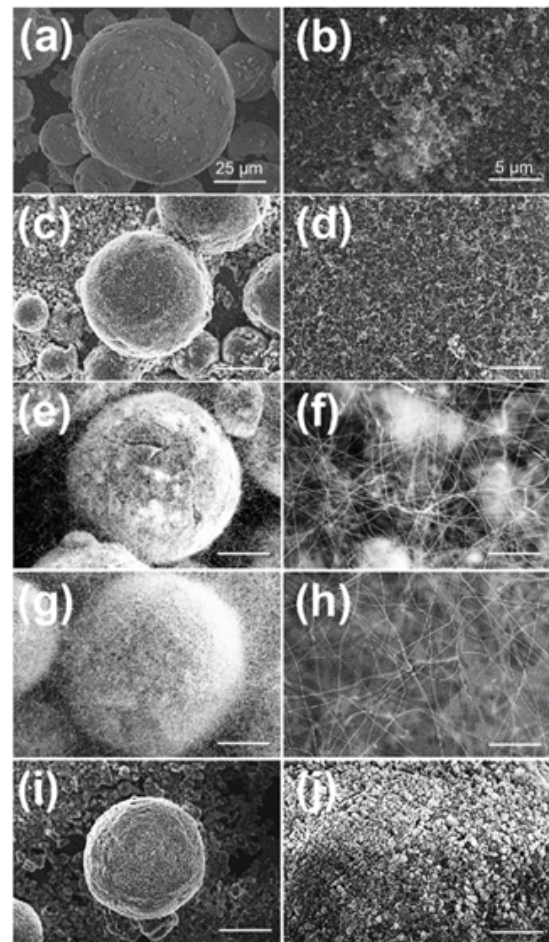


Fig. 2. SEM images show growth behavior of CNTs on spherical alumina particles. (a) as-purchased alumina, (b) CNTs grown at 700 °C, (c) and (d): 750 °C, (e) and (f): 800 °C, (g) and (h) 825 °C, and (i) and (j): 850 °C.

인 CNTs 형상의 물질이 고르게 분포되어 있는 것이 관찰되었다. 그림 2(g)와 2(h)는 825 °C의 온도에서 합성한 결과로서, 알루미나의 표면을 CNTs 형상의 물질이 높은 밀도로 성장한 것을 볼 수 있었다. 하지만 850 °C에서 합성한 결과[그림 2(i) 및 2(j)]에서는 CNTs가 거의 성장하지 않은 것으로 관찰 되었다. 합성 온도에 따른 CNTs의 합성 거동을 종합하면, 750 °C부터 합성 온도가 높아질수록 CNTs의 합성 수율은 증가하다가 825 °C에서는 가장 높은 수율을 보이고, 850 °C에서는 CNTs의 성장 수율이 다시 급격하게 낮아지는 것을 알 수 있었다.

그림 3(a)는 합성 온도의 변화에 따라 합성된 복합체의 라만 분광분석 결과를 나타낸다. 일반적으로 CNTs의 라만분석 결과로는 1350 cm^{-1} 부근에서 구조적 결함이나 비정질 탄소와 관련된 피크인 D-band가 나타나고, 1580 cm^{-1} 부근에서 탄소 간 sp^2 결합에 따른 분자의 신축 진동(Stretching vibration mode)과 관련된 피크인 G-band가 나타나므로, 이 두 피크의 강도 비(Intensity ratio, ID/IG) 값을 통하여 CNTs의 구조적 완성도(Structural integrity)를 정량적으로 평가할 수 있게 된다[20]. 그림 3(a)에서 보듯이 모든 샘플에

서 D 및 G-band가 관찰되는 것으로 보아, 합성된 물질은 CNTs임을 알 수 있었고, 700에서 825 °C까지 합성 온도가 증가 할수록 ID/IG 값은 2.057에서 0.299로 대폭 감소함을 확인하였다. 특히, 700 및 750 °C 합성 시료의 라만 스펙트럼은 다중벽 탄소나노튜브(Multi-walled CNTs, MWNTs)의 것과 유사하며, 800 및 825 °C 합성 시료에서 보이는 스펙트럼의 형태는 수층으로 이루어진 탄소나노튜브(Few-walled CNTs)의 것과 아주 유사한 결과를 보여주고 있다. 하지만, 850 °C에서 합성한 샘플에서는 0.5의 비교적 낮은 ID/IG값을 보이고 있으나, SEM 관찰결과[그림 2(i), 2(j)]에서 알 수 있듯이 낮은 CNTs 합성 수율로 인하여 알루미나 분말의 라만 피크(382, 415, 575, 644, 752 cm^{-1})가 관찰되었다. 위 결과에 따라 Al_2O_3 표면에서 CNTs 합성의 최적온도는 825 °C임을 확인하였다. 그림 3(b)는 결정성 평가를 위해 실시한 XRD 분석 결과이다. 합성온도 700에서 825 °C까지는 거의 유사한 스펙트럼을 보이고 있으며, 850 °C에서는 회절 피크의 강도가 낮아지는 것을 알 수 있었다. X선 분석 결과 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 상의 회절피크(26, 35, 38, 44, 53, 57, 61, 67, 69, 77 °)가 나타났으며[JCPDS #01-080-0786], 26 및 44 °에서는 CNTs 피크와 중복되어 나타난 것을 알 수 있었다[JCPDS #96-101-1061]. 이상의 결과로부터 고순도 및 고수율 CNTs를 합성할 수 있는 최적의 온도는 825 °C임을 알 수 있다.

다음은 CNTs 합성 촉매인 ferritin의 농도를 0.1, 0.5, 1.0, 2.0 mg/mL로 달리하고 최적의 합성 온도인 825 °C에서 합성한 후 CNTs의 합성 거동을 살펴보았다. 0.1 mg/mL의 경우[그림 4(a), 4(b)], CNTs가 합성된 것을 관찰할 수는 있으나 수율이 높지 않은 것을 알 수 있었다. 한편, 0.5 mg/mL의 페리틴 농도에서는 높은 수율로 CNTs가 전면에서 균일하게 합성된 것이 관찰되었다[그림 4(c), 4(d)]. 페리틴의 농도가 더 높은 1.0 [그림 4(e), 4(f)] 및 2.0 mg/mL[그림 4(g), 4(h)]에서는 알루미나 표면에 작은 입자들이 관찰되었으며, 원형의 알루미나 분말의 윤곽이 비교적 선명하게 보이는 것으로 보아 합성 수율은 0.5 mg/mL에 비해 낮은 것을 예측할 수 있다. 표면에서 관찰된 작은 입자들은 페리틴에서 유기된 철 나노입자가 뭉친(Agglomeration) 것인지, 알루미나 표면의 구조 와해(Structural degradation)로 생긴 것인지에 대한 추가적인 분석이 요구된다. 하지만, 모든

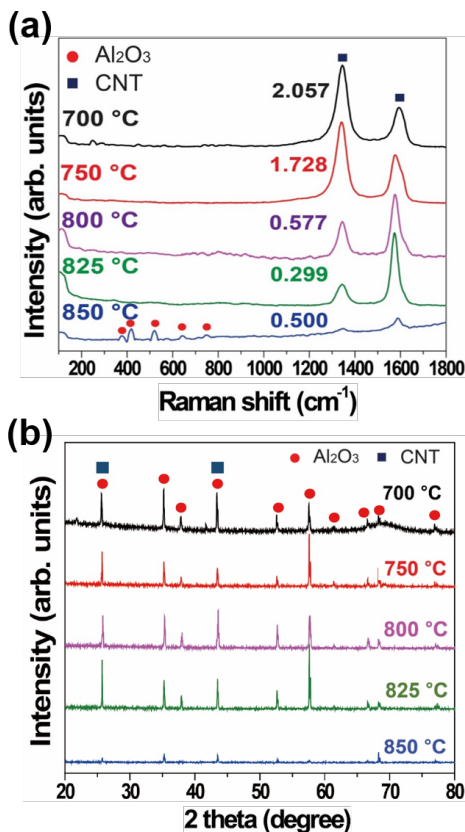


Fig. 3. (a) Raman and (b) XRD spectra from CNTs grown on alumina powders at different growth temperatures.

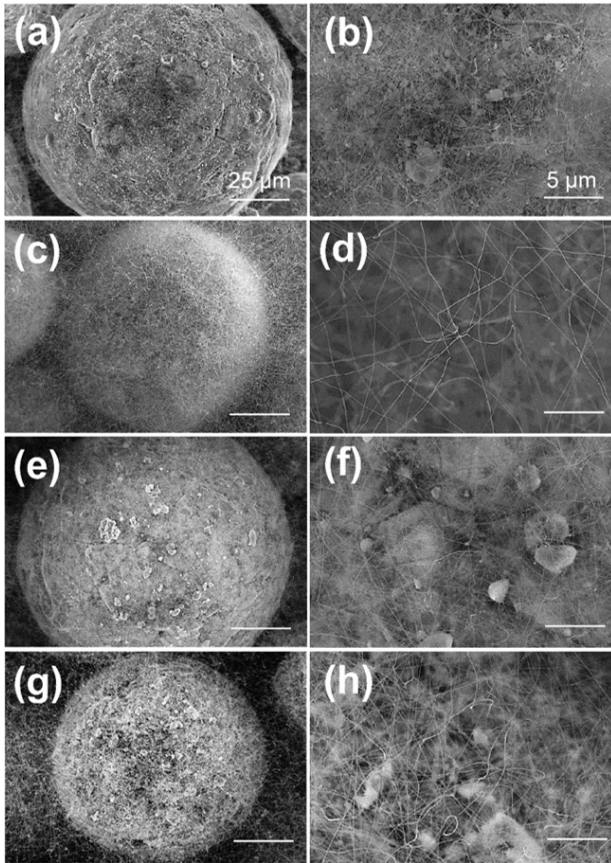


Fig. 4. SEM images show growth behavior of CNTs on spherical alumina particles using different concentrations of ferritin solution. (a) and (b): 0.1, (c) and (d): 0.5, (e) and (f): 1.0, and (g) and (h): 2.0 mg/mL.

조건에서 가늘고 긴 형상의 CNTs가 합성된 점이 확인되었다.

그림 5는 그림 4의 시료를 라만 분광기를 이용하여 분석한 결과이다. 그림 4(a) 및 4(b)에서 낮은 수율의 CNTs가 관찰된 조건(0.1 mg/mL)에서 알루미나 분말의 라만 피크(382, 415, 644, 752 cm^{-1})가 관찰되었다. 한편 I_D/I_G 도 비교적 높

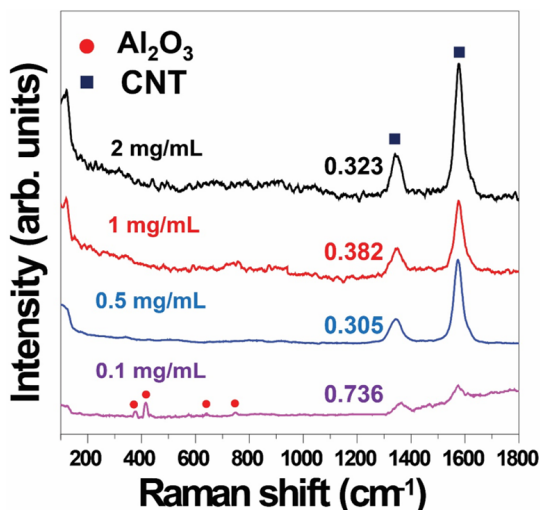


Fig. 5. Raman profiles of CNT grown on alumina powders using different concentrations of ferritin solution.

은 0.736 값을 나타내었다. 페리틴의 농도가 0.5, 1.0, 2.0 mg/mL로 높아질수록 알루미나에서 기인한 피크는 사라졌으며, I_D/I_G 도 0.305, 0.382, 0.323 등 비교적 낮은 값을 나타내었다. 이는 구조적으로 우수한 고품질의 CNTs가 합성되었음을 의미하고 있으며, 정량적인 결과로부터 0.5mg/mL의 조건으로 합성한 CNTs의 품질이 가장 우수하다고 예상할 수 있다.

그림 6은 본 연구를 통해 도출된 최적의 CNTs 합성 조건인 촉매농도 0.5 mg/mL, 합성온도 825 $^{\circ}\text{C}$ 의 조건으로 합성한 시료의 미세구조를 분석하기 위해 실시한 TEM 분석 결과이다. 그림 6(a)는 저배율 TEM 이미지로 비교적 많은 양의 CNTs를 볼 수 있으며, 그림 6(b)는 하나(Individual)의 탄소나노튜브를 보여주고 있다. SEM과 Raman 분석 결과로부터 예상했듯이 합성된 물질이 CNTs임을 직접적으로 확인할 수 있었으며, MWNTs에서 종종 관찰 되는 튜브 축 방향에 수직으로 내부 칸막이 구조로 되어 있는 대나무형(Bamboo-structured) CNTs가 아닌 순수한 튜브 구조로 이루어짐을 알 수 있었다. 그림 6(c)는 튜브의 벽(Tube wall)이 약 14층의 곧은 구조로 이루어진 것을 보여주고 있으며, 이는 합성된 CNTs가 높은 구조적 결정성을 갖고 있음을 의미한다. 이렇게 높은 결정성을 갖는 튜브 구조의 CNTs는 열 및 전류의 일 방향 전도(Uniaxial transport)에 큰 도움이 되는 구조로서 본 연구에서 합성된 CNTs가 알루미나 분말의 높은 열전도성을 연계시켜 주

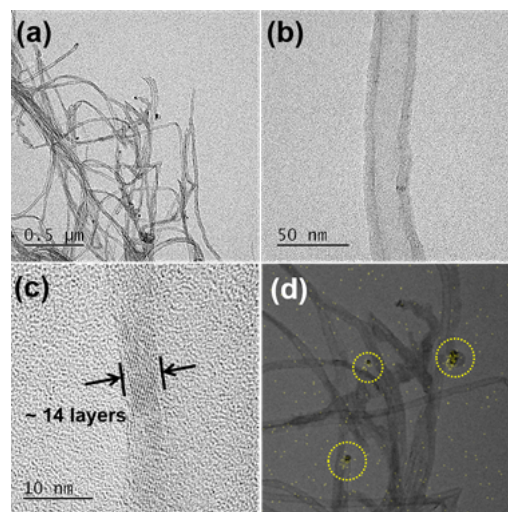


Fig. 6. (a) Low and (b) high-magnified TEM images of CNTs grown at 825 $^{\circ}\text{C}$ on alumina powders using 0.5 mg/mL ferritin solution. (c) High magnified image reveals the number of tube walls. (d) EDS mapping result overlapped with bright field image shows catalytic particles contain Fe element as indicated by yellow dot circles.

는 방열 층진 소재로서 적합한 미세구조를 갖고 있다고 할 수 있다. 그림 6(d)는 CNTs의 합성 기구(Growth mechanism)를 고찰하기 위해 그림 6(a)에서 촉매 입자 부분을 EDS 2-D mapping 한 결과를 보여주고 있다. 금속 촉매 부분(노란색 원)에서 Fe 성분이 집중적으로 나오는 것으로 보아, CNTs는 철 촉매를 시작점으로 자라나는 Tip-growth 모델에 의해 합성되는 것으로 사료된다. 일반적으로 Tip-growth model 에 의해 합성되는 CNTs의 직경은 촉매의 직경과 유사한 것으로 알려져 있는데, 이 점으로부터 방열분야 응용에 적합한 CNTs를 합성하기 위해서는 촉매의 농도제어를 통한 촉매 나노입자의 크기 제어가 중요하다는 것을 예상할 수 있다[21]. 끝으로, 본 연구 결과는 고정형 TCVD 장치를 이용하였기에, 분말 기반의 기능성 소재 개발에 있어서 균일성 및 대량 생산 측면에서 한계점을 보이고 있다. 회전형 반응기 또는 유동층 반응기 등을 이용하여 대량 합성이 가능하다면 고성능 방열소재의 경제적 생산에 큰 기여를 하게 될 것으로 예상되며, 이에 대한 후속연구가 진행 중에 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 높은 열전도성 및 계면 안정성을 유지할 수 있는 고효율 방열소재를 개발하기 위한 초기 실험으로, 대표적인 세라믹 방열 소재인 알루미나 분말 표면에 CNTs를 직접 합성하고자 하였다. 수평형 TCVD 장치에서 에틸렌을 탄소원으로 이용하여 CNTs를 합성하였으며, 합성 시 합성 온도 및 페리틴 촉매의 농도를 공정 변수로 설정하여 그 효과를 살펴보았다. 합성 결과 촉매농도 0.5 mg/mL, 합성온도 825 °C의 조건이 가장 우수한 품질의 CNTs를 합성할 수 있는 최적 조건임을 알 수 있었다. TEM 직접 관찰 결과, 높은 결정성의 MWNTs가 높은 수율로 합성되었음을 알 수 있었고, Tip-growth 모델에 의해 합성된 것으로 사료된다.

References

- [1] A. J. Mcnamara, Y. Joshi, Z. M. Zhang, Thermal resistance of thermal conductive adhesive anchored carbon nanotubes interface material, *Int. J. Therm. Sci.*, 96 (2015) 221-226.
- [2] K. C. Yung, H. Liem, H. S. Choy, W. K. Lun, Thermal performance of high brightness LED array package on PCB, *Int. Commun. Heat Mass Transfer*, 37 (2010) 1266-1272.
- [3] G. Sui, S. Jana, W. H. Zhong, M. A. Fuqua, C. A. Ulven, Dielectric properties and conductivity of carbon nanofiber/semi-crystalline polymer composites, *Acta Mater.*, 56 (2008) 2381-2388.
- [4] J. S. Roh, J. S. Ahn, B. J. Kim, H. Y. Jeon, S. K. Seo, S. H. Kim, S. W. Lee, Thermal emissivity changes as a function of degree of flakes alignment on the graphite surfaces, *J. Kor. Inst. Surf. Eng.*, 42 (2009) 95-101.
- [5] H. Yu, G. Xu, X. Shen, X. Yan, C. Shao, C. Hu, Effects of size, shape and floatage of Cu particles on the low infrared emissivity coatings, *Progr. Org. Coating*, 66 (2009) 161-166.
- [6] J. Hone, M. Whitney, C. Piskoti, A. Zettl, Thermal conductivity of single-walled carbon nanotubes., *Phys. Rev. B*, 59 (1999) 2514-2516.
- [7] J. Hone, M. C. Llaguno, M. J. Biercuk, Thermal properties of carbon nanotubes and nanotube-based materials., *Appl Phys A Mater. Sci. Process*, 74 (2002) 339-343.
- [8] E. Pop, D. Mann, Q. Wang, Thermal conductance of an individual single-wall carbon nanotube above room temperature, *Nano Lett.*, 6 (2006) 96-100.
- [9] A. A. Balandin, Thermal properties of graphene and nanostructured carbon materials., *Nat. Mater.*, 10 (2011) 569-581.
- [10] J. L. Blackburn, A. J. Ferguson, C. Cho, J. C. Grunlan, Carbon-nanotube-based thermoelectric materials and devices, *Adv. Mater.*, 30 (2018) 1704386.
- [11] Y. Noorhana, S. Surajudeen, R. Amir, S. Hassan, S. Afza, A. Bilal, Z. Saima, G. Maneka, Percolation threshold of multiwall

- carbon nanotube-PVDF composite for electromagnetic wave propagation, *Nano Express*, 1 (2020) 010060.
- [12] M. L. Sham, J. K. Kim, Surface functionalities of multi-wall carbon nanotubes after UV/Ozone and TETA treatments, *Carbon*, 44 (2006) 768-777.
- [13] P. C. Ma, J. K. Kim, B. Z. Tang, Functionalization of carbon nanotubes using a silane coupling agent, *Carbon*, 44 (2006) 3232-3238.
- [14] S. H. Hong, M. H. Kim, C. K. Hong, D. S. Jung, S. E. Shim, Encapsulation of multi-walled carbon nanotubes by poly(4-vinylpyridine) and its dispersion stability in various solvent media, *Synth. Met.*, 158 (2008) 900-907.
- [15] K. T. Lau, D. Hui, Effectiveness of using carbon nanotubes as nano-reinforcements for advanced composite structures, *Carbon*, 40 (2002) 1605-1606.
- [16] J. S. Jang, J. W. Bae, S. H. Yoon, A study on the effect of surface treatment of carbon nanotubes for liquid crystalline epoxide-carbon nanotube composites, *J. Mater. Chem.*, 13 (2003) 676-681.
- [17] Y. S. Song, J. R. Youn, Influence of dispersion states of carbon nanotubes on physical properties of epoxy nanocomposites, *Carbon*, 43 (2005) 1378-1385.
- [18] B. J. Lee, S. I. Jo, E. H. Yoon, A. R. Lee, W. Y. Lee, S. G. Heo, J. S. Hwang, G. H. Jeong, Fabrication and characterization of polymer-based carbon nanomaterial composites for thermal conductive adhesive application, *Kor. Inst. Surf. Eng.*, 53 (2020) 160-168.
- [19] G. H. Jeong, S. Suzuki, Y. Kobayashi, A. Yamazaki, H. Yoshimura, Y. Homma, Size control of catalytic nanoparticles by thermal treatment and its application to diameter control of single-walled carbon nanotubes, *Appl. Phys. Lett.*, 90 (2007) 043108.
- [20] G. H. Jeong, R. Hatakeyama, T. Hirata, K. Tohji, K. Motomiya, N. Sato, Y. Kawazoe, Structural deformation of single-walled carbon nanotubes by a magnetized alkali-fullerene plasma method, *Appl. Phys. Lett.*, 79 (2001) 4213-4215.
- [21] G. H. Jeong, A. Yamazaki, S. Suzuki, Y. Kobayashi, Y. Homma, Behavior of catalytic nanoparticles during CVD for carbon nanotube growth, *Chem. Phys. Lett.*, 422 (2006) 83-88.