

# 발열제어부품소재 적용을 위한 실리콘 복합조성물의 열전도 특성

곽호두, 오원태 

동의대학교 신소재공학부

## Thermal Characteristics of Silicone Composites for the Application to Heat-Controllable Components

Ho-Du Kwak and Weontae Oh

Division of Advanced Materials Engineering, Dong-Eui University, Busan 47340, Korea

(Received November 2, 2018; Revised November 14, 2018; Accepted November 19, 2018)

**Abstract:** Hexagonal boron nitride particles (s-hBN) modified with 3-aminopropyl triethoxysilane (APTES) were used for the preparation of silicone composite materials. The microstructure of the composite materials was observed, and the thermal conduction and mechanical characteristics of the composite sheets were studied based on the compositions and microstructures. When a small amount of s-hBN particles was used, the thermal conductivity of the composite improved as a whole, and the tensile strength of the sheet also increased. The thermal conductivity and tensile strength of the composite in which a small amount of carbon fiber was added along with s-hBN were further improved. However, the use of carbon nanotubes with structural characteristics similar to those of carbon fiber resulted in lower thermal conductivity and tensile strength. Elastic silicone composites exhibiting 2.5 W/mK of thermal conductivity and a low hardness are expected to be used as thermally conductive interfacial sheet materials.

**Keywords:** Silicone composite, Thermal conductivity, Mechanical property, Boron nitride

### 1. 서론

방열 및 열전도 기능이 우수한 부품소재의 개발을 위해 다양한 열전도 기능성 소재들에 대한 관심이 높아지고 있는데, alumina ( $Al_2O_3$ ), aluminum nitride (AlN), boron nitride (BN) 등과 같은 세라믹소재 입자들이 높은 열전도 특성은 물론, 전기 절연성, 화학적·기계적 안정성과 우수한 내열성 등과 같은 장점을 때문에 많이 적용되고 있다 [1-3]. Hexagonal 형태의

boron nitride (hBN)은 매우 높은 면방향 열전도도 (~400 W/mK 이상)를 갖는 소재로 알려져 있다 [4,5]. 높은 수준의 면방향 열전도 특성과 전기절연특성은 그래핀을 대체할 수 있는 열전도 응용소재로 활용성이 기대된다. 하지만 두께방향의 열전도도(~20 W/mK)가 상대적으로 낮아 열전도도의 이방성이 뚜렷한 특징을 보인다 [6-8]. 이와 함께, 탄소나노튜브 및 탄소섬유와 같은 대표적인 탄소소재들도 높은 열전도 특성, 우수한 열안정성, 기계적 안정성을 나타내어 열전도 응용소재로 많이 고려되고 있다. 그래핀의 높은 열전도도 (~5,000 W/mK) 수준에 미치지 못하지만, 탄소나노튜브는 이론적으로 ~3,500 W/mK 정도의 열전도도로 알려져 있으며, 탄소섬유도 종류에 따라 20~500 W/mK 정도의 높은 열전도도를 나타내어 열전도성 소재로의

✉ Weontae Oh; [wtoh2005@deu.ac.kr](mailto:wtoh2005@deu.ac.kr)

Copyright ©2019 KIEEME. All rights reserved.  
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

응용을 위해 많이 적용되고 있다. 일본 Dexerials사에서는 열전도도가 ~30 W/mK 수준인 탄소섬유를 사용한 실리콘 복합소재 시트제품을 개발하여 시판하고 있다.

최신 전자제품들의 고성능화 및 소형화 추세에 따라 제한된 공간 내에 더 많은 소자들을 집적하면서 이전의 전자기기보다 발열문제가 심각해지고 있으며, 발열에 따른 기기의 오작동과 성능 저하 문제, 심지어 발열에 의한 전자기기의 폭발, 화재 및 화상위험이 증가하고 있다 [1,9-11]. 전자기기의 동작 중 발생하는 열과 이로 인한 해당기기의 온도 상승을 억제하기 위하여 LED 조명기기의 방열판, 스마트폰과 스마트패드의 열확산시트, 히트펌프, TIM (thermal interface material) 제품 등과 같이 다양한 방열부품소재기술과 방열설계기술이 적용되고 있다. 첨단전자기기의 성능이 개량되고 제품이 소형화될수록 발열문제의 해결을 위한 소재기술의 필요성은 점차로 커지고 있다.

본 연구에서는 열전도 특성이 우수한 hexagonal boron nitride (hBN) 입자의 표면을 유기실란으로 표면 개질하여 실리콘 바인더와의 상용성을 개선시키는 연구를 수행하였다. 유기실란으로 표면 처리된 hBN (s-hBN) 입자를 사용하여 만든 실리콘 복합소재의 열전도 특성과 기계적 특성을 비교 분석하여 이들의 구조적 특성과의 관계에 대해 고찰하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 재료 및 시료 준비

본 연구에서는 열전도 기능성 소재로 hexagonal boron nitride (hBN), 탄소섬유(carbon fiber, CF), 탄소나노튜브(multiwalled carbon nanotube, MWNT)와 알루미늄( $Al_2O_3$ )를 사용하였다. hBN 입자는 평균입도 8  $\mu m$ 의 순도 98.5% 제품으로 DECI사(중국)에서 구입하였다. 탄소섬유(CF)는 Mitsubishi Rayon사의 DIALEAD K6371M 제품(평균 길이 50  $\mu m$ )을, 탄소나노튜브(MWNT)는 CNANO사(중국)의 Flotube 9200 (직경 13~25 nm, 순도 98+) 제품을 사용하였다. 알루미늄( $Al_2O_3$ , Denka)는 평균 입도 5  $\mu m$ 와 45  $\mu m$ 인 제품(순도 99.8+)을 사용하였다. 바인더로 사용되는 액상실리콘수지(liquid silicone resin, LSR)는 대흥특수화학의 DS-510A (주제)와 DS-510B (경화제)를 사용하였다. 이 밖에 3-Aminopropyl Triethoxysilane (APTES, 99%)는 Sigma-Aldrich에서, 황산( $H_2SO_4$ , 95%), 질산( $HNO_3$ ,

60~62%), 톨루엔(99.5%), 에탄올(99.5%)은 모두 Junsei사에서 구입하여 사용하였다.

hBN의 표면 처리는 APTES를 사용하여 다음과 같은 방법으로 실시하였다. 먼저 황산과 질산을 3:1(v/v)의 비율로 200 mL를 혼합하여 강산성 용액을 준비하고, 여기에 hBN 5.0 g을 넣어서 초음파 수조(75 Hz)를 사용하여 상온에서 10시간 동안 초음파 처리하였다. 이어서, 초음파 처리된 혼합용액을 80°C에서 18시간 동안 다시 교반하며 환류 처리하였다. 교반 이후, 처리된 hBN 용액을 pH가 ~6이 될 때까지 증류수로 세척하고 원심분리 및 진공 여과장치로 필터링하는 과정을 반복하였다. 이렇게 산처리된 hBN 입자는 60°C에서 12시간 동안 건조시킨 후에 유기실란(APTES)으로 표면처리하기 위해 사용되었다. 250 mL 3 구 플라스크에 산처리된 hBN 4 g과 톨루엔 120 mL를 넣고 교반하면서 0.2 g의 3-Aminopropyl Triethoxysilane (APTES)을 첨가하였다. 혼합용액을 초음파 수조(75 Hz)에서 1시간 동안 초음파 처리하고, 계속하여 110°C의 질소 분위기에서 8시간 동안 교반하며 환류 처리하였다. 반응 종료 후에 혼합용액을 진공여과장치를 사용하여 여과하고 에탄올로 세척하였다. APTES로 처리된 hBN (s-hBN)은 다시 에탄올을 첨가하여 20분 동안 초음파 수조에서 추가적으로 초음파 처리하는 과정을 3회 반복하여 잔류하는 미반응 APTES를 제거하였다. 만들어진 s-hBN은 80°C의 진공오븐에서 10시간 이상 건조되었다.

바인더로 액상실리콘 수지(LSR)를 사용하는 복합조성물을 다음과 같이 준비하였다. 실리콘 주제(DS-510A) 6.5 g에 표 1에서 보는 바와 같은 함량의 열전도 기능성 첨가제 40 g을 Paste Mixer (Suflux, PM-500D)를 사용

**Table 1.** Filler compositions of the composites in this work.

Sample	hBN	s-hBN	CF	MWNT	Alumina (g)	
					45 $\mu m$	5 $\mu m$
Cmp-1	0.50	-	-	-	23.70	15.80
Cmp-2	1.00	-	-	-	23.40	15.60
Cmp-3	-	0.50	-	-	23.70	15.80
Cmp-4	-	1.00	-	-	23.40	15.60
Cmp-5	-	0.50	0.05	-	23.67	15.78
Cmp-6	-	0.50	-	0.05	23.67	15.78

- (CF) Carbon fiber, (MWNT) Multiwalled carbon nanotube  
 - Total filler content was fixed at 80 wt% in the composite: 10 g of binder and 40 g of fillers.

하여 500 rpm, 800 rpm, 1,000 rpm에서 각각 2분, 2분 30초, 30초 동안 혼합하는 과정을 2회 반복하였다. 이후에, 경화제(DS-510B) 3.5 g을 추가하고 1,000 rpm에서 2분 혼합하여 실리콘 복합조성물을 제조하였다.

제조된 실리콘 복합조성물을 시트로 가공하기 전에 내부의 잔류기포를 제거하기 위해 상온의 진공오븐에서 10분 동안 탈포하였다. 탈포된 복합조성물을  $1 \times 200 \times 200 \text{ mm}^3$  규격의 mold를 사용하여  $130^\circ\text{C}$ 에서 3분간 프레스 가공하여 접착시트를 제조하였다.

## 2.2 분석

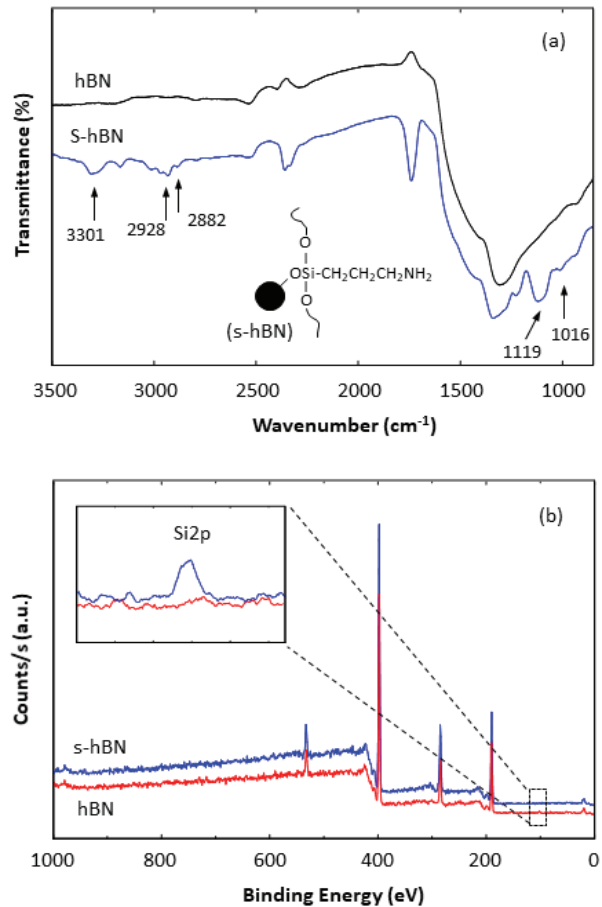
S-hBN 입자의 유기실란 표면 개질은 FT-IR (Nicolet 6700, Thermo Scientific, USA)과 XPS (ESCALAB250, resolution of 1 eV and 0.05 eV) 분석을 수행하여 확인하였다. hBN와 s-hBN 시료의 열중량 분석(thermogravimetric analysis)은 TGA (N-1000, SCINCO, Korea)를 사용하여 질소 분위기에서 실시하였다. 실리콘 복합조성물 시트의 표면구조 분석은 FE-SEM (Quanta 3D, Thermo Fisher Scientific, USA, operated at 15 kV)으로, 인장 및 신장률 분석은 만능물성시험기(MTS-810, Taewon Tech. Korea)를 사용하여 5 mm/min의 속도로 실시하였다. 인장 및 신장률 시험을 위한 시편의 제작은 KSM 6518 규격에 따라 실시하였다. 시트 시료의 경도(hardness) 변화는 ASTM D2240 규격에 따라 Shore A 경도계(HP, Bareiss, Germany)로 분석하였다. 내습성 분석은 IEC 60068 규격으로, 온도  $40 \pm 2^\circ\text{C}$ , 습도  $93 \pm 3\%$ 의 조건에서 24시간 동안 시트 시료를 처리한 후의 인장 및 신장률과 경도 값을 처리 전의 측정치와 비교하여 분석하였다. 실리콘 복합조성물 시트 시료의 열전도도( $\lambda$ )는 Laser-Flash법(LFA-447, Netzch, Germany)으로  $25^\circ\text{C}$ 에서 열확산도( $\alpha$ )를 측정한 후, 다음의 식 (1)을 이용하여 계산하여 구하였다.

$$\lambda(T) = \alpha(T)C_p(T)\rho(T) \quad (1)$$

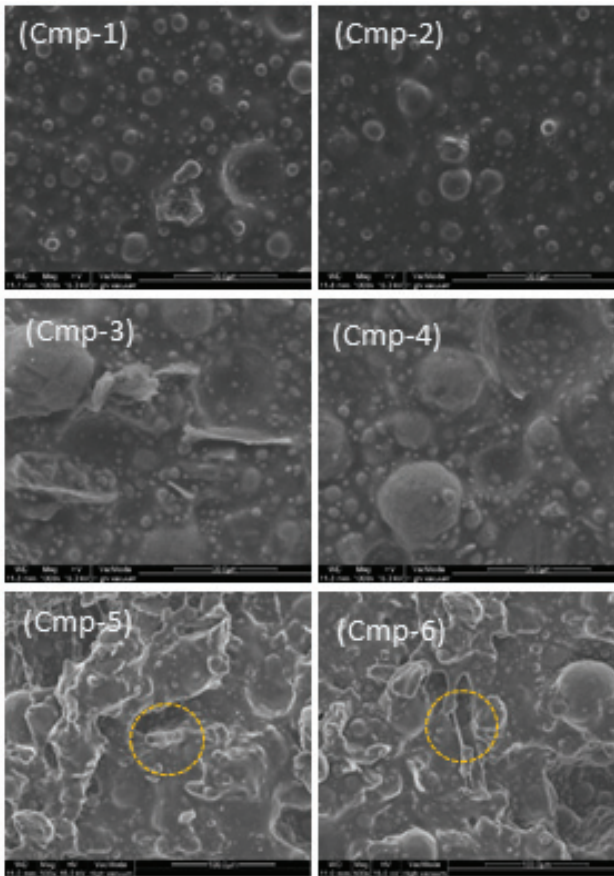
여기서,  $\alpha$  ( $\text{mm}^2/\text{s}$ ),  $C_p$  ( $\text{J/gK}$ ),  $\rho$  ( $\text{g/cm}^3$ )는 각각 열확산도, 비열용량, 밀도를 나타낸다. 시료의 비열은 DSC (DSC-200F3, Netzch, Germany)를 사용하여  $25^\circ\text{C}$ 에서 측정하였다. 열전도도를 분석하기 위해 상기와 같은 방법으로 흑연시트를 제조하였고, 지름 25.4 mm와 두께 1 mm의 규격으로 가공하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Hexagonal 형태의 boron nitride (hBN) 표면을 3-aminopropyl triethoxysilane (APTES)으로 화학적 개질하여 만들어진 입자(s-hBN)의 FT-IR과 XPS 분석 결과를 그림 1에 나타내었다. 유기실란(APTES)으로 표면이 개질된 s-hBN 입자에서는  $3,301 \text{ cm}^{-1}$ 에서  $-\text{NH}_2$  신축진동 피크,  $2,928 \text{ cm}^{-1}$ 와  $2,992 \text{ cm}^{-1}$ 에서  $-\text{CH}_2-$  신축진동 피크와  $1,119 \text{ cm}^{-1}$ 와  $1,016 \text{ cm}^{-1}$ 에서 Si-O-Si 신축진동 피크를 확인할 수 있다. 이 피크들은 모두 hBN 입자에서는 확인되지 않은 것으로, 실험 방법에 기술된 방법으로 준비된 s-hBN 입자들 표면에 유기실



**Fig. 1.** (a) FT-IR spectra and (b) XPS plots of hBN and s-hBN particles. S-hBN indicates hexagonal boron nitride (hBN) which is chemically modified with 3-aminopropyl triethoxysilane. Drawing in FT-IR spectra presents the 3-aminopropyl triethoxysilyl group modified on the surface of hBN particle.



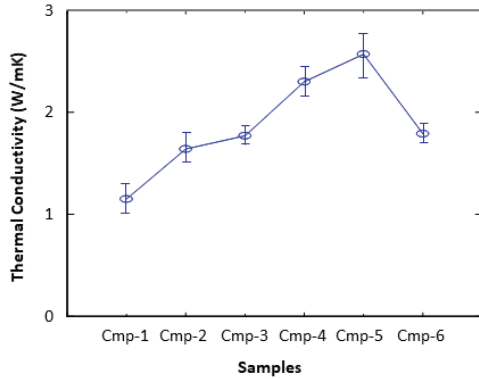
**Fig. 2.** FE-SEM images of silicone composites of which the compositions are summarized in Table 1. CF and MWNT structures are identified within the yellow circles.

란이 잘 개질되었음을 보여준다. XPS 분석 결과에서도 s-hBN 입자에서 Si2p 피크 (101.8 eV)가 확인되어 APTES로 표면 개질이 잘 이루어졌음을 확인할 수 있었다. 이와 함께 TGA 열안정성 분석 결과에서, s-hBN 입자는 300°C 넘어서부터 약 1% 정도의 중량 감소를 관찰하였는데 (본 논문에 그래프 제시 안 함), 이것은 입자 표면에 개질된 APTES 그룹들의 낮은 열안정성에 의해 열분해가 있어났기 때문이다. 상대적으로 hBN은 800°C까지의 전체 분석구간에서 중량의 변화가 관찰되지 않았다.

그림 2는 표 1에서 확인할 수 있는 바와 같이 hBN, s-hBN, 탄소섬유(CF), 탄소나노튜브(MWNT)와 알루미늄을 첨가제로 사용하여 실리콘 복합조성물을 준비하고 이들의 미세조직 구조를 FE-SEM으로 분석한 결과를 비교하여 보여준다. 그림의 복합조성물 내에 첨가제 함량은 80 wt%로 동일하다. 섬유상의 CF와 MWNT를

사용하지 않은 Cmp-1,2,3,4에서는 실리콘 바인더 매트릭스에 다양한 크기의 알루미나 입자들이 고르게 흩어져 분포하는 아일랜드 형태의 모포구조를 나타내는 반면, Cmp-5,6의 미세구조에서는 매우 거친 표면에서 일정한 형태의 알루미나 입자구조를 찾기 어렵다. 이미지의 노란색 원 내부에 첨가된 CF와 MWNT 구조를 확인할 수 있었다. CF 또는 MWNT를 포함하지 않고 첨가된 hBN의 표면 처리 유무에 따른 복합조성물 시료 (Cmp-1,2 vs. -3,4)의 미세구조에서는 뚜렷한 차이를 확인할 수 없지만, 유기실란(APTES)으로 표면을 처리한 s-hBN을 사용한 시료(Cmp-3,4)에서 알루미나 입자들이 큰 것과 작은 것들이 비교적 고르게 섞여서 분포하는 것으로 보인다. SEM 이미지들 중에서 Cmp-5,6 시료의 미세구조는 Cmp-1,2,3,4의 시료와 크게 다를 수 있었다. 이는 기본적으로 CF와 MWNT를 사용한 조성물과 사용하지 않은 조성물의 차이로 이해할 수 있다. Cmp-5,6 시료는 s-hBN과 CF 또는 MWNT를 혼합한 조성물로서 알루미나 입자구조를 분명하게 확인할 수 없었다. 이는 복합조성물 내부에서 소량 존재하는 s-hBN 입자들이 알루미나와 실리콘 바인더의 상용성(compatability)을 개선하는 데 효과를 나타낸 것으로 이해할 수 있다. 그림 1(a)의 s-hBN 모델에서 보는 바와 같이 유기실란 그룹으로 표면이 처리된 s-hBN 입자들은 siloxane 주사슬을 갖는 실리콘 수지와 화학적 상용성이 크게 향상되어 비록 밀도 차이는 크지만 서로 잘 혼합할 수 있는 조건을 갖추게 된다. 이런 환경은 알루미나 입자들이 Cmp-1,2 시료에서보다 상대적으로 더욱 잘 혼합될 수 있는 조건을 갖춘 것으로 판단할 수 있다. SEM 이미지상에서 알루미나 입자들을 구분하기 어려운 것은 혼합상(mixed phase)에서 첨가물들이 매우 잘 섞여 있음을 의미한다.

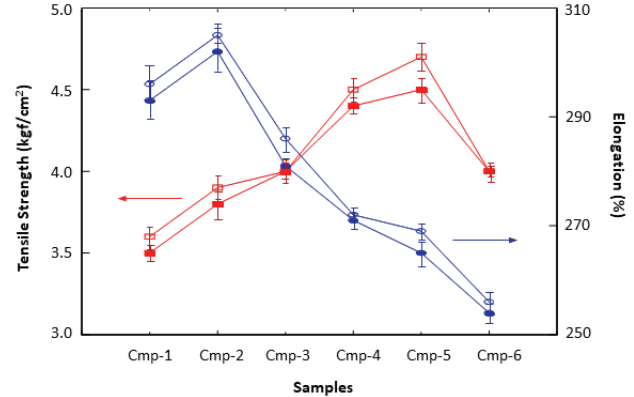
그림 3은 실험에서 기술된 바와 같이 준비된 복합조성물 시료들의 열전도도를 비교한 결과를 보여준다. 각 시료의 구체적인 성분비는 표 1에 정리되어 있다. 아무 처리를 하지 않은 hBN을 사용한 시료에 비해 실란으로 표면을 처리한 s-hBN을 사용하였을 때 시료의 열전도도가 상승하였다. 이것은 앞서 SEM 이미지 결과를 설명하면서 기술한 바와 같이, APTES로 표면 처리된 s-hBN 입자들이 실리콘 바인더에 잘 섞여 전체적으로 알루미나 입자의 상용성을 향상시키는 데 효과를 나타내었기 때문으로 분석된다. 동일한 함량을 적용한 시료들(Cmp-1 vs. -3; Cmp-2 vs. -4)의 열전도도 향상 수준이 오차 범위를 넘는다. S-hBN을 사용하고 추가적으로 CF를 적용한 시료(Cmp-5)의 열전도도



**Fig. 3.** Thermal conductivity plot of silicone composites. The compositions of samples are summarized in Table 1.

는 더욱 향상되어 2.5 W/mK 이상의 결과로 분석되었다. 알루미늄, boron nitride 같은 세라믹 입자들의 상용성 향상과 함께, 섬유상의 CF가 실리콘 바인더 내에 균일하게 분포됨으로써 이종 재료 사이의 열저항을 크게 낮추는 효과를 나타낸 결과로 해석된다 [12]. 하지만 MWNT를 사용했을 때는 열전도도 상승효과가 확인되지 않았다. 나노스케일의 지름(13~25 nm)을 갖는 MWNT는 bundle 상으로 존재하는데 일반적인 가공조건에서 개별 가닥으로 하나씩 분리하는 게 매우 어려운 것으로 알려져 있다 [13-15]. 본 연구에서 준비한 Cmp-6 시료에서도 이와 같이 첨가된 MWNT가 집단적으로 응집되어 조성물 내부에서 고르게 분포하기 어려운 상태로 MWNT의 우수한 열전도 특성을 나타내지 못한 결과로 이해할 수 있다. 결과적으로 섬유상의 탄소소재는 나노 스케일의 두께를 갖는 MWNT보다 마이크로 수준의 직경을 갖는 CF가 복합조성물 내에서 분산이 더욱 효과적이고 복합조성물 시트의 열전도 특성 향상에 유리하다는 것을 보여준다.

복합조성물 시트의 기계적 특성을 분석하기 위해 인장 및 신장률을 측정된 결과를 그림 4에 정리하였다. 시편의 내습 특성을 확인하기 위해 IEC 60068 규격에 따라 40°C, 93% 습도 분위기에서 24시간 처리한 후의 시편에 대한 분석 결과를 비교하여 정리하였다. 파단 시 인장강도는 열전도도의 분석 결과와 비슷한 경향을 나타내었는데, 유기실란(APTES)으로 표면을 처리한 s-hBN을 소량 사용하였을 때, 처리를 하지 않은 hBN을 사용한 시료의 시편보다 인장강도가 상승하였다. 그리고 CF를 추가로 사용한 Cmp-5 시편은 이보다 인장강도가 더욱 상승하였다. 하지만 CF 대신 MWNT를 사용하였을 때는 오히려 인장강도가 감소한 결과를 확



**Fig. 4.** Tensile and elongation plots at fracture of silicone composite sheets. The compositions of samples are summarized in Table 1. Squared and circled symbols present the tensile strength and elongation, respectively. Open symbols were measured from the as-prepared samples, and filled symbols were measured from the samples after thermo-hygrostat treatment under IEC 60068 standard.

인할 수 있었다. 이것도 앞서 기술한 설명과 같은 이유로 이해할 수 있다. S-hBN의 사용은 실리콘 바인더와의 상용성을 향상시키게 되고, 복합조성물 내부에서 이종 재료 사이의 상분리(phase separation)을 억제하여 기계적 강도의 상승을 유도한 결과로 해석된다 [16]. CF를 추가로 사용하면 앞서 기술한 바와 같이 복합조성물 매트릭스 내부에서 탄소 사슬구조가 균일하게 거미줄 같은 네트워크를 형성하게 되어 인장강도를 더욱 강화시키는 synergy 효과를 나타낸 결과로 판단된다. Cmp-6의 낮은 인장강도는 내부의 MWNT들이 자체적인 응집이 강하여 개별사슬들의 네트워크 효과를 기대할 수 없기 때문으로 생각된다. 내습실험 후의 인장강도는 이보다 약간 낮은 측정값으로 확인되었는데 습기에 의한 기계적 특성의 저하가 심각하지 않았다. 모든 시료 시편들의 신장률은 250% 이상의 수준을 나타내었으나, hBN을 사용한 시료의 시편이 가장 높은 신장률을 나타냈으며 인장강도가 상승하면 신장률은 감소하는 경향을 보였다. S-hBN과 CF 또는 MWNT의 사용이 복합조성물의 인성(toughness)을 저하시키는 효과를 주고 있음을 알 수 있다. 시료의 경도(hardness)는 42~48 수준으로 측정되었는데, 인장강도의 변화와 같은 경향을 나타내었으며 내습실험 전후의 차이를 보이지 않았다. 일반적으로 경도와 인성은 반비례의 관계를 갖는 것을 고려할 때 본 연구에서 준비된 복합조성물 시료도 이 관계에 잘 일치하는 결과를 나타내었다.

#### 4. 결론

Hexagonal 형태를 갖는 boron nitride 입자(hBN)를 소량 사용하는 실리콘 복합조성물 시트의 열전도 특성과 기계적 특성을 연구하였다. 3-aminopropyl triethoxysilane (APTES)을 사용하여 화학적으로 개질된 s-hBN 입자는 FT-IR과 XPS 분석을 수행하여 확인되었다. APTES로 표면 개질된 s-hBN 입자는 실리콘 바인더와의 상용성이 향상되어 다량으로 사용되는 알루미늄 입자의 혼합과 분산에 매우 효과적으로 작용한다. 표면 개질하지 않은 hBN을 사용한 실리콘 복합 조성물 시료에 비해 열전도도가 크게 개선되었으며, 탄소섬유를 추가적으로 사용할 경우에 시료의 열전도도는 더욱 크게 개선되는 효과를 확인하였다. 이와 함께 s-hBN과 탄소섬유의 사용은 복합조성물의 인장강도와 경도 특성을 향상시키는 데 효과가 있음을 확인하였다.

#### ORCID

Weontae Oh

<https://orcid.org/0000-0003-1958-9604>

#### 감사의 글

이 논문은 2017년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(No.2017R1D1A3B03034728).

#### REFERENCES

- [1] C. Y. Hsieh and S. L. Chung, *J. Appl. Polym. Sci.*, **102**, 4734 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.1002/app.25000>]
- [2] Y. Nagai and G. C. Lai, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **105**, 197 (1997). [DOI: <https://doi.org/10.2109/jcersj.105.197>]
- [3] S. Li, S. Qi, N. Liu, and P. Cao, *Thermochim. Acta*, **523**, 111 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.tca.2011.05.010>]
- [4] I. Jo, M. T. Pettes, J. Kim, K. Watanabe, T. Taniguchi, Z. Yao, and L. Shi, *Nano Lett.*, **13**, 550 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1021/nl304060g>]
- [5] G. H. Lee, Y. J. Yu, C. Lee, C. Dean, K. L. Shepard, P. Kim, and J. Hone, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 243114 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3662043>]
- [6] E. K. Sichel, R. E. Miller, M. S. Abrahams, and C. J. Buiocchi, *Phys. Rev. B*, **13**, 4607 (1976). [DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.13.4607>]
- [7] A. A. Balandin, S. Ghosh, W. Bao, I. Calizo, D. Teweldebrhan, F. Miao, and C. N. Lau, *Nano Lett.*, **8**, 902 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1021/nl0731872>]
- [8] K.M.F. Shahil and A. A. Balandin, *Nano Lett.*, **12**, 861 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.1021/nl203906r>]
- [9] Y. He, B. E. Moreira, A. Overson, S. H. Nakamura, C. Bider, and J. F. Briscoe, *Thermochim. Acta*, **357**, 1 (2000). [DOI: [https://doi.org/10.1016/S0040-6031\(00\)00357-9](https://doi.org/10.1016/S0040-6031(00)00357-9)]
- [10] L. C. Sim, S. R. Ramanan, H. Ismail, K. N. Seetharamu, and T. J. Goh, *Thermochim. Acta*, **430**, 155 (2005). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.tca.2004.12.024>]
- [11] Y. Shabany, *Proc. ITherm 2002. Eighth Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Systems (Cat. No.02CH37258)* (IEEE, San Diego, USA, 2002) p. 489.
- [12] J. Kim, Y. D. Kim, D. G. Nam, J. S. Bae, J. H. Yeum, and W. Oh, *J. Korean Phys. Soc.*, **68**, 551 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.3938/jkps.68.551>]
- [13] W. Zhao, C. Song, and P. E. Pehresson, *J. Am. Chem. Soc.*, **124**, 12418 (2002). [DOI: <https://doi.org/10.1021/ja027861n>]
- [14] K. D. Ausman, R. Piner, O. Lourie, R. S. Ruoff, and M. Korobov, *J. Phys. Chem. B*, **104**, 8911 (2000). [DOI: <https://doi.org/10.1021/jp002555m>]
- [15] G. W. Lee, J. Kim, J. Yoon, J. S. Bae, B. C. Shin, I. S. Kim, W. Oh, and M. Ree, *Thin Solid Films*, **516**, 5781 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2007.10.071>]
- [16] S. J. Yun, H. G. Im, and J. H. Kim, *Polymer*, **34**, 97 (2010).