

# 흑연블록 제조를 위한 등압성형 시 일축가압 예비성형의 압력변화에 따른 기계적 및 전기적 특성 변화

변태섭 · 전동표 · 이상혜 · 이상우 · 노재승\*  
금오공과대학교 신소재공학과

## Changes in Mechanical and Electrical Properties as a Function of Unidirectional Pressure Changes in Preforming While Isostatic Pressing for Graphite Block Fabrication

Tae-Sub Byun, Dong-Pyo Jeon, Sang-Hye Lee, Sang-Woo Lee and Jae-Seung Roh\*

*Kumoh National Institute of Technology, School of Materials Science and Engineering*

(Received January 31, 2023; Revised February 15, 2023; Accepted February 20, 2023)

**Abstract** In this study, a graphite block is fabricated using artificial graphite processing byproduct and phenolic resin as raw materials. Mechanical and electrical property changes are confirmed due to the preforming method. After fabricating preforms at 50, 100, and 150 MPa, CIP molding at 150 MPa is followed by heat treatment to prepare a graphite block. 150UP-CIP shows a 12.9% reduction in porosity compared with the 150 MPa preform. As the porosity is decreased, the bulk density, flexural strength, and shore hardness are increased by 14.9%, 102.4%, and 13.7%, respectively; and the deviation of density and electrical resistivity are decreased by 51.9% and 34.1%, respectively. Therefore, as the preforming pressure increases, the porosity decreases, and the electrical and mechanical properties improve.

**Keywords:** Graphite (Carbon) block, Unidirectional pressing, CIP, Preform

### 1. Introduction

흑연블록은 전기전도도와 열전도도가 높아 제강용 전극 봉에 활용되며, 자기 윤활성이 우수하여 베어링, 카본브러쉬, 진공펌프용 베인, 벨브시트 등 특수기계부품에 활용된다. 또한 내열성, 내식성, 내화학성을 가지고 있어 실리콘 잉곳 제조 장비의 재료, 내화물, mechanical seals에 사용되고 있다[1-4].

흑연블록의 충전재는 코크스, 무연탄, 천연흑연, 인조흑연 등이 주로 사용되고, 결합재는 일반적으로 열경화성 수지와 피치가 사용된다. 흑연블록은 목적과 형태에 맞게 기계 가공하여 사용하게 되는데 가공 중 다량의 인조흑연 가공부산물을 발생시킨다. 가공 중 발생한 인조흑연 가공

부산물은 일부 재활용되며, 나머지 대부분은 폐기된다[5-7]. 인조흑연 가공부산물을 흑연블록의 충전재로 재활용한다면 원료 비용이 절약될 뿐만 아니라 폐기로 인한 토양 및 대기과 관련된 환경오염 개선으로 긍정적인 영향을 미칠 것으로 판단된다.

흑연블록은 충전재와 결합재를 이용하여 혼합, 혼련, 성형, 탄화, 함침, 흑연화 공정을 통해 제조된다. 그 중 성형은 최종 제품의 물성에 큰 영향을 끼치므로 제품의 용도에 맞는 성형방식을 선택하는 것이 중요하다. 흑연블록의 성형은 냉간정수압성형(CIP), 압출성형, 일축가압성형(Unidirectional pressing)등의 방식이 있다[8-10].

일축가압성형은 비교적 단순한 공정과 빠른 공정속도로 성형할 수 있다는 장점이 있다. 그러나 금형 벽면과 분말

- 변태섭·전동표·이상혜: 학생, 이상우·노재승: 교수

\*Corresponding Author: Jae-Seung Roh, TEL: +82-54-478-7744, FAX: +82-54-478-7744, E-mail: jsroh@kumoh.ac.kr

사이의 마찰로 인한 잔류응력과 성형체의 증횡비에 의해 불균일한 밀도 분포를 갖게 된다. 특히 금형 형상이 복잡할수록 더 큰 불균일한 밀도 분포를 가지게 되어 제품의 기계적 특성에 큰 영향을 준다[11-13].

CIP 방식으로 제조된 흑연블록은 일축가압성형 보다 상대적으로 높은 밀도를 얻을 수 있지만, 성형공정이 복잡하고 공정속도가 느리다. 또한 모든 표면에 압력이 가해져 위치 별 균일한 밀도의 흑연블록을 얻을 수 있으나, 모든 표면에 압력이 가해지기 때문에 복잡한 형상을 한 번에 얻기 힘들다는 단점도 존재한다[12-15]. 일축가압성형 후 CIP 처리를 하게 되면 높은 밀도를 얻을 수 있고, 공극을 줄여 기공의 크기가 감소하여 기계적 강도 및 내균열성을 향상시킨다[16-18]. 세라믹 소재의 일축가압성형 후 CIP 처리에 대한 연구는 이전부터 꾸준히 진행되어 왔지만 흑연블록 제조에 대한 연구는 찾아보기 어렵다.

본 연구팀은 인조흑연 가공부산물을 이용하여 일축 가압 성형으로 제조한 흑연블록의 물성에 대한 연구결과 흑연블록으로 재활용할 수 있음을 보고한 바 있다[19-21]. 본 연구에서는 인조흑연 가공부산물을 활용하여 균일하고 높은 밀도로 성형이 가능한 CIP 성형의 장점을 극대화하기 위해 일축가압성형을 도입하여 균일하고 물성이 우수한 흑연블록을 제조하고자 하였다.

## 2. Experimental procedure

### 2.1. Raw materials and preparations

본 연구에서 충전재 및 결합재는 POCO Graphite社(미국)의 EDM-3제품을 기계가공 후 발생한 인조흑연 가공부산물과 강남화성社(대한민국)의 노블락(Novolac type) 분

말 페놀수지(CB-8081)를 사용하였다. 인조흑연 가공부산물의 평균 입도는  $13.4\ \mu\text{m}$ 이었다.

충전재와 결합재를 8:2의 무게비로 혼합하여 50 MPa, 100 MPa, 150 MPa로 예비성형 하였다. 예비성형은 일축가압 방식이었으며, 크기는  $60 \times 40 \times 60\ \text{mm}$ 였다. 예비성형체는 CIP를 이용하여 각각 150 MPa의 압력으로 2분 유지한 후  $40^\circ\text{C}$ 의 오븐에서 24시간 건조하였다. 탄화는 불활성분위기의 관상로에서  $1000^\circ\text{C}$ 까지 승온시킨 후 1시간 유지하였다. 전체적인 실험순서는 Fig. 1에 나타내었다.

본 연구에 사용된 충전재는 이미 흑연화가 완료된 원료이며, 탄화 후 전체 중량의 80% 이상을 차지하므로 본 연구에서 제조된 블록은 흑연블록이라 칭하였다[21].

성형조건에 따른 샘플 명은 Table 1에서 명명하였다.  $60 \times 40 \times 60\ \text{mm}$ 의 크기로 제조된 흑연블록의 밀도 산포를 확인하기 위해 절단기를 이용하여 Fig. 2와 같이 절단하였으며, 절단 시 날의 두께만큼 흑연블록의 두께가 소모되었다. 절단된 15개의 흑연블록은 #1500 사포로 연마하여  $10 \times 10 \times 50\ \text{mm}$  크기로 맞춘 후 데이터 한 포인트 당 15개의 샘플을 측정하여 산포로 나타내었다.

### 2.2. Properties of Graphite Block

#### 2.2.1. Bulk density and Porosity

흑연블록의 부피밀도와 기공률은 아르키메데스법(ISO 18754:2020)을 이용하여 측정하였다. 절단한 흑연블록을  $60^\circ\text{C}$  오븐에 24시간 넣어 건조무게를 측정한다. 건조무게를 측정한 흑연블록을 증류수에 넣고 3시간 끓인 후 상온까지 냉각시켜 수중무게와 포수무게를 측정하고 식 (1)과 (2)에 따라 부피밀도와 기공률을 계산한다[19].

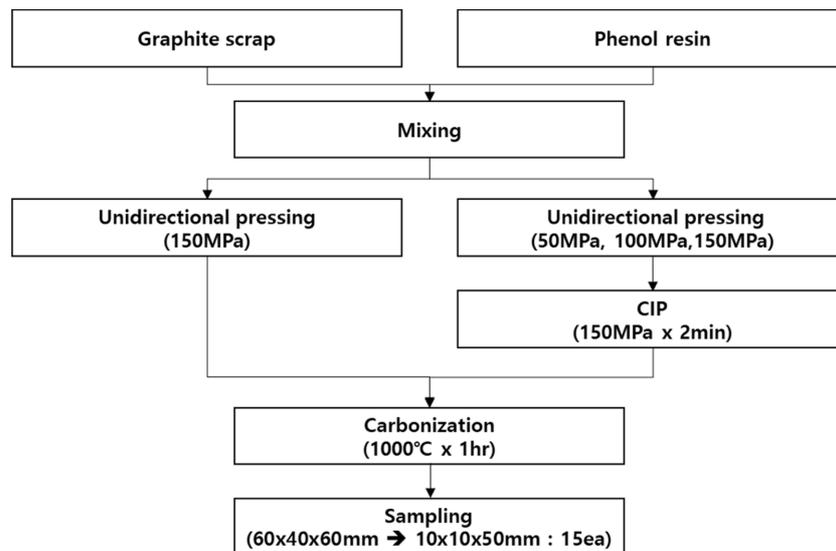
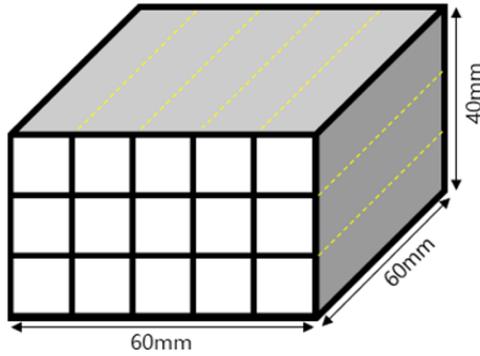


Fig. 1. Experimental procedure.

**Table 1. Sample name as a function of molding condition**

Sample name	CIP	Preform pressure (MPa)	Remark
50UP-CIP		50	
100UP-CIP	O	100	
150UP-CIP		150	
150UP	X	150	Comparative group



**Fig. 2. Scheme of 60 × 40 × 60 mm graphite block and 10 × 10 × 50 mm sampling.**

$$\text{부피밀도(g/cm}^3\text{)} = \text{건조무게} / (\text{포수무게} - \text{수중무게}) \quad (1)$$

$$\text{기공률(\%)} = \{(\text{포수무게} - \text{건조무게}) / (\text{포수무게} - \text{수중무게})\} \times 100 \quad (2)$$

성형 조건 별 절단한 15개의 샘플 중 최댓값과 최솟값의 부피밀도를 이용하여 식 (3)에 따라 밀도 산포를 계산하였다.

$$\text{밀도 산포(g/cm}^3\text{)} = \text{부피밀도 최댓값} - \text{부피밀도 최솟값} \quad (3)$$

2.2.2. Electrical resistivity

전기비저항은 전압강하법(ASTM C 611)을 이용하여 측정하였다. 전기비저항 측정 전 흑연블록의 폭과 두께를 측정하여 시험편의 단면적을 구하고, 0.5 A, 1.0 A, 1.5 A, 2.0 A, 2.5 A, 3.0 A의 전류에서 측정된 전압강하(V)의 값을 식 (4)에 적용하여 전기비저항을 계산한다[21].

$$\rho = eS / il \quad (4)$$

$\rho$  : 전기비저항( $\Omega\text{cm}$ ),  $e$  : 전압단자 사이의 전압강하(V),  $S$  : 시험편의 단면적( $\text{cm}^2$ ),  $i$  : 전류(A),  $l$  : 전압단자 사이의 길이(cm)

2.2.3. Flexural strength

흑연블록의 굽힘강도는 만능재료시험기 (GALDABINI, Quasar 100)를 사용하였고, ASTM D 7972 규격으로 3점 굽힘 시험하여 측정하였다. 굽힘강도 측정은 표점거리를

40 mm로 하여 0.5 mm/min의 속도로 측정하고 식 (5)으로 계산한다[19, 21].

$$S_b = 3WI / 2bt^2 \quad (5)$$

$S_b$  : 굽힘강도( $\text{N/cm}^2$ ),  $I$  : 지점 간의 거리(cm),  $W$  : 최대하중,  $b$  : 시험편의 폭(cm),  $t$  : 시험편의 두께(cm)

2.2.4 Shore hardness

쇼어경도는 지시형(D형)으로 ASTM C 886 규격을 이용하여 측정하였다. 측정 영역은 시험편의 가로, 세로 각각 6 mm씩 띄어 5번씩 측정하였다.

3. Results and Discussion

3.1. Bulk density and Porosity

Fig. 3(a)는 각 조건 별 흑연블록의 부피밀도 및 기공률이다. 150UP의 부피밀도는  $1.395 \text{ g/cm}^3$ 이며 기공률은 33.3%이다. 50UP-CIP, 100UP-CIP, 150UP-CIP의 부피밀도는 각각  $1.558 \text{ g/cm}^3$ ,  $1.562 \text{ g/cm}^3$ ,  $1.603 \text{ g/cm}^3$ 이고, 기공률은 각각 25.2%, 25.0%, 20.4%이다. CIP 성형을 거치고, 예비성형압력이 커질수록 부피밀도는 증가하였고 기공률은 감소하였다.

기공률 감소는 CIP 성형 전 실시되는 예비성형압력과 연관이 있는 것으로 보인다. S.M Lee는 일축가압성형 시 성형 압력이 증가할수록 흑연블록의 열린기공률이 증가하는 것을 보고하였다[20]. 이는 일축가압성형 시 분말이 치밀화되는 동안 내부의 공기들이 배출되기 위해 성형체 외부로 통로를 만들게 된다. 이때 성형압력이 커질수록 분말의 치밀화가 증가하면서 내부의 공기들이 더 많이 배출되는 과정에서 통로가 많이 만들어진다.

따라서 CIP 성형 전 실시되는 예비성형압력이 증가하면 성형체 내부에 열린기공률이 증가하게 되고 CIP 성형 시 공기의 배출을 용이하게 해주어 흑연블록의 부피밀도를 증가시키고 기공률을 감소시킨 것으로 생각된다.

Fig. 3(b)는 각 조건 별 흑연블록의 밀도 산포이다. 150UP의 밀도 산포는  $0.027 \text{ g/cm}^3$ 이며, 50UP-CIP, 100UP-CIP, 150UP-CIP의 밀도 산포는 각각  $0.024 \text{ g/cm}^3$ ,  $0.023 \text{ g/cm}^3$ ,  $0.013 \text{ g/cm}^3$ 이다. CIP성형을 거치고, 예비성형압력이 커질수록 밀도 산포는 감소하였다.

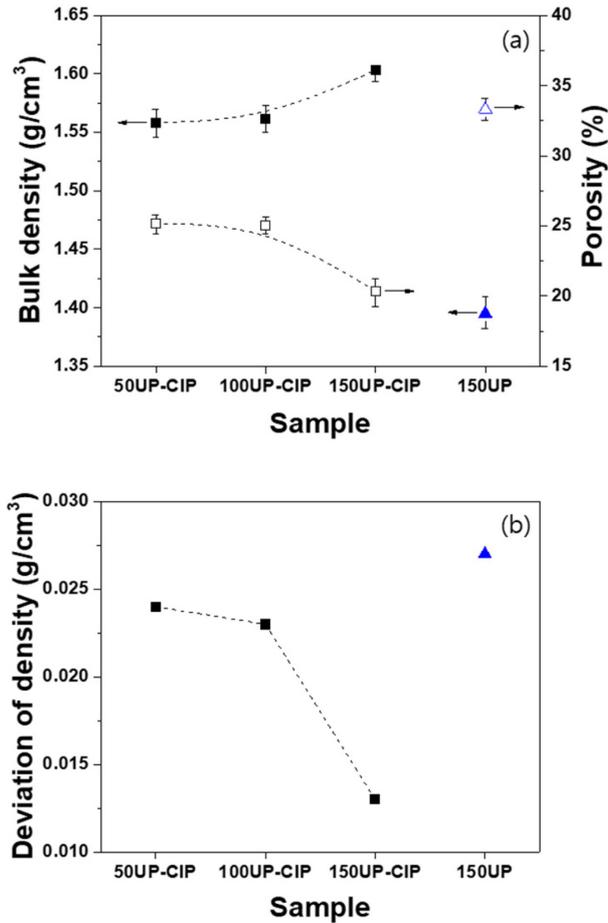


Fig. 3. (a) Bulk density and porosity, (b) deviation of density of graphite block.

### 3.2. Electrical resistivity, Flexural strength and Shore hardness

Fig. 4는 각 조건 별 흑연블록의 전기비저항 측정 결과를 나타내었다. 150UP의 전기비저항은  $42.5 \mu\Omega\text{m}$ 이며, 50UP-CIP, 100UP-CIP, 150UP-CIP의 전기비저항은 각각  $31.6 \mu\Omega\text{m}$ ,  $31.0 \mu\Omega\text{m}$ ,  $28.0 \mu\Omega\text{m}$ 이다. 기공률과 같은 경향으로 CIP성형을 거치고 예비성형압력이 커질수록 전기비저항이 감소하였다.

전기비저항은 기공률과 연관지어 설명이 가능하다. 탄화 공정 이후 흑연블록 내부에는 기공이 형성되며, 이러한

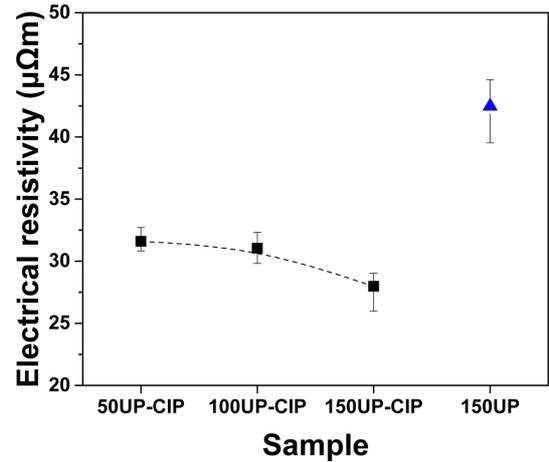


Fig. 4. Electrical resistivity of graphite block as a function of molding condition.

기공은 전자의 이동을 방해하는 결함으로 존재한다. 또한 흑연블록 내부에서는 열린 기공과 폐쇄된 기공이 존재하는데 열린 기공이 폐쇄된 기공보다 전자의 이동을 더욱 방해하여 전기비저항이 증가한다[22]. 열린 기공의 수가 적을수록 즉 기공률이 낮을수록 전자의 이동이 용이하여 전기비저항은 감소하게 된다. 따라서 기공률이 가장 낮은 150UP-CIP의 전기비저항이 가장 낮게 측정된 것으로 판단된다.

Fig. 5(a)는 각 조건 별 흑연블록의 굽힘강도를 나타내었다. 150UP의 굽힘강도는  $16.6 \text{ MPa}$ 로 측정되었다. 50UP-CIP, 100UP-CIP, 150UP-CIP의 굽힘강도는 각각  $26.4 \text{ MPa}$ ,  $31.1 \text{ MPa}$ ,  $33.6 \text{ MPa}$ 이고, 150UP에 비해 각각 59.0%, 87.3%, 102.4%의 증가율을 보였다.

Fig. 5(b)는 각 조건 별 흑연블록의 쇼어경도 측정 값을 나타내었다. 150UP의 쇼어경도는  $71.0 \text{ HsD}$ 이고, 50UP-CIP, 100UP-CIP, 150UP-CIP의 쇼어경도는 각각  $76.2 \text{ HsD}$ ,  $76.7 \text{ HsD}$ ,  $80.7 \text{ HsD}$ 이다. 150UP-CIP는  $80 \text{ HsD}$ 가 넘는 쇼어경도를 나타내었다.

CIP 성형을 거치고 예비성형압력이 커질수록 굽힘강도 및 쇼어경도는 증가하였다.

흑연블록의 기계적 특성은 기공의 크기 및 면적, 기공률

Table 2. Properties of graphite block

	Sample			
	50UP-CIP	100UP-CIP	150UP-CIP	150UP
Bulk density ( $\text{g/cm}^3$ )	1.558	1.562	1.603	1.395
Porosity (%)	25.2	25.0	20.4	33.3
Deviation of density ( $\text{g/cm}^3$ )	0.024	0.023	0.013	0.027
Electrical resistivity ( $\mu\Omega\text{m}$ )	31.6	31.0	28.0	42.5
Flexural strength (MPa)	26.4	31.1	33.6	16.6
Shore hardness (HsD)	76.2	76.7	80.7	71.0

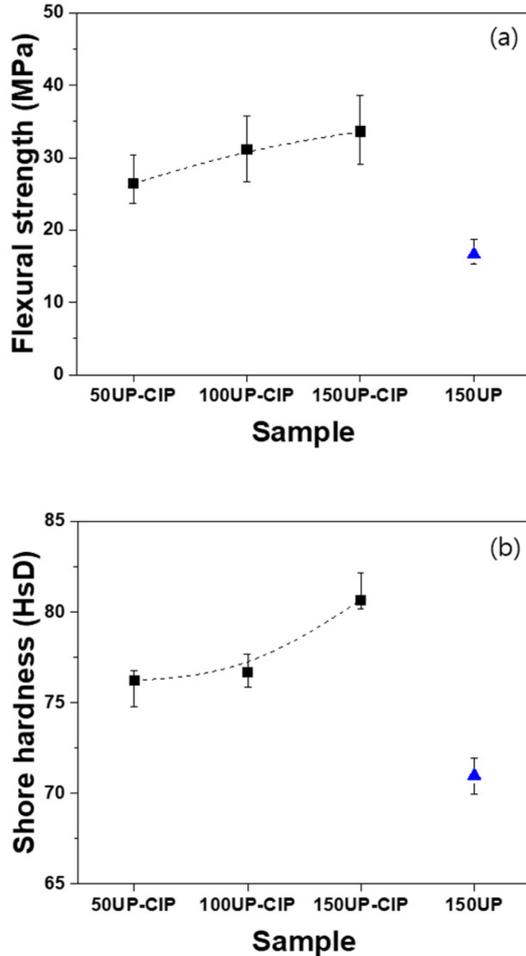


Fig. 5. Mechanical properties of graphite block as a function of molding condition (a) flexural strength, (b) shore hardness.

에 영향을 받는다. 흑연블록 내부의 기공은 응력집중이 되는 부분이며, 기공의 크기 및 면적, 기공률이 감소할수록 흑연블록 하중에 걸리는 단면적의 감소가 적어 기계적 특성을 증가시킨다[23-25]. 따라서 기공률이 가장 낮은 150UP-CIP의 기계적 특성이 가장 우수한 것으로 판단된다.

#### 4. Conclusion

본 연구는 예비성형체를 제조한 후 CIP성형을 거친 흑연블록과 150 MPa 예비성형체의 기계적, 전기적 특성 변화에 대하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

150UP-CIP의 기공률은 20.4%로 150UP보다 12.9% 감소하였으며, 기공률이 감소하면서 부피밀도, 굽힘강도, 쇼어경도는 각각 14.9%, 102.4%, 13.7% 증가하였고, 전기비저항은 34.1% 감소하였다.

일축가압성형만 진행한 흑연블록보다 예비성형 후 CIP를 거친 흑연블록은 기공률이 감소하였으며, 부피밀도, 기

계적 특성, 전기적 특성이 향상되는 것을 확인하였다. 예비성형의 압력이 증가할수록 그 향상 효과는 크게 나타났다.

따라서 흑연블록 제조 시 CIP 성형을 위한 예비성형의 압력이 높을수록 기계적 특성 및 전기적 특성이 향상되고, 밀도 산포가 적은 고밀도의 등방흑연블록 제조가 가능함을 확인하였다.

#### Acknowledgement

이 연구는 금오공과대학교 학술연구비로 지원되었음 (2020).

#### References

- [1] K. Y. Cho, K. J. Kim, Y. S. Lim and Y. J. Chung: Carbon Lett., **7** (2006) 196.
- [2] L. Xiaowei, R. J. Charles and Y. Suyuan: Nucl. Eng. Des., **227** (2004) 273.
- [3] G. D. Considine: Van Nostrand's Encyclopedia of Chemistry 5<sup>th</sup> ed, Hoboken (Ed.), Wiley-Interscience, New Jersey (2005).
- [4] N. Cunningham, N. Lefèvre, J. P. Dodelet, Y. Thomas and S. Pelletier: Carbon, **43** (2005) 3054.
- [5] K. Janerka and D. Bartocha: Arch. Foundry Eng., **8** (2008) 55.
- [6] A. Roessler and D. Crettenand: Dyes Pigm., **63** (2004) 29.
- [7] C. I. Fan and H. Chen: J. Mater. Sci., **46** (2011) 2140.
- [8] S. Ragan and H. Marsh: J. Mater. Sci., **18** (1983) 3161.
- [9] S. M. Lee, D. S. Kang and J. S. Roh: Carbon Lett., **16** (2015) 135.
- [10] D. H. An, K. H. Kim, C. H. Lim and Y. S. Lee: Carbon Lett., **31** (2021) 1357.
- [11] K. T. Kim, S. W. Choi and H. Park: J. Eng. Mater. Technol., **122** (2000) 238.
- [12] H. T. Lee and K. T. Kim: Transactions of the Korean Society of Mechanical Engineers A, **21** (1997) 1116.
- [13] J. W. Jeong and K. T. Kim: Transactions of the Korean Society of Mechanical Engineers A, **22** (1998) 330.
- [14] J. H. Baek, S. G. Lee and M. P. Chun: J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng., **32** (2019) 333.
- [15] S. Yeo and Y. W. Lee: J. Nucl. Mater., **515** (2019) 245.
- [16] N. Shinohara, M. Okumiya, T. Hotta, K. Nakahira, M. Naito and K. Uematsu: J. Eur. Ceram. Soc., **20** (2000) 843.
- [17] A. R. Rojas, C. D. Rios, A. G. Reyes, A. A. Elguezabal and M. H. B. Bernal: Mater. Res. Express, **5** (2018) 105602.
- [18] G. Y. Akimov: Refract. Ind. Ceram., **39** (1998) 283.
- [19] S. H. Lee, S. M. Lee, W. P. Jang and J. S. Roh: J. Korean Inst. Met. Mater., **28** (2021) 13.

- [20] S. M. Lee, S. H. Lee and J. S. Roh: *J. Mater. Sci.*, **28** (2021) 7.
- [21] S. H. Lee, J. H. Kim, W. S. Kim and J. S. Roh: *Materials*, **15** (2022) 3259.
- [22] T. Sun, L. Dong, C. Wang, W. Guo, L. Wang and T. Liang: *New Carbon Materials*, **28** (2013) 349.
- [23] G. Lu and Z. M. Xiao: *J. Porous Mater.*, **6** (1999) 359.
- [24] R. W. Rice: *J. Mater. Sci.*, **28** (1993) 2187.
- [25] K. Oshida, N. Ekinaga, M. Endo and M. Inagaki: *Tanso*, **1996** (1996) 142.