

# 고밀도화 탄소 블록 제조 시 콜타르게 피치의 점도가 함침에 미치는 영향

조종훈\*,\*\* · 황혜인\*,\*\* · 김지홍\* · 이영석\*\* · 임지선\*,\*\*\*† · 강석창\*,†

\*한국화학연구원(KRICT) C1가스탄소융합연구센터, \*\*충남대학교 응용화학공학부  
\*\*\*한국기술연합대학원대학교 화학소재 및 공정  
(2021년 9월 9일 접수, 2021년 9월 23일 수정, 2021년 9월 23일 채택)

## Effect of Coal Tar Pitch Viscosity on Impregnation for Manufacture of Carbon Blocks with High Density

Jong Hoon Cho\*,\*\*, Hye In Hwang\*,\*\*, Ji Hong Kim\*, Young-Seak Lee\*\*, Ji Sun Im\*,\*\*\*† and Seok Chang Kang\*,†

\*CI Gas & carbon Convergent Research, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), Daejeon 34114, Republic of Korea

\*\*Department of applied chemical engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Republic of Korea

\*\*\*Advanced Materials and Chemical Engineering, University of Science and Technology (UST), Daejeon 34113, Republic of Korea

(Received September 9, 2021; Revised September 23, 2021; Accepted September 23, 2021)

### 초 록

본 연구에서는 코크스, 바인더 피치 및 함침 피치를 사용하여 고밀도 탄소 블록을 제조하고, 함침 공정 시 피치의 유동성이 탄소 블록의 고밀도화에 미치는 영향을 고찰하였다. 코크스와 바인더 피치의 고압 성형을 통해 그린블록을 제조하고 열처리 공정을 통하여 탄소 블록을 얻었다. 열처리 공정 시 바인더 피치의 휘발에 의해 생성된 기공을 제거하고자 함침 공정을 진행하였다. 함침 공정은 함침 피치를 용융하는 전처리 단계와 피치를 탄소 블록에 함침하는 고압 반응 단계로 나누어 진행하였다. 함침 피치의 용융은 140~200 °C에서 진행하였으며, 열처리 온도가 증가할수록 함침 피치의 점도가 감소하였다. 함침 피치의 점도 감소는 유동성을 향상시켜 탄소 블록 내부 기공을 효율적으로 함침하여 탄소 블록의 기공률을 83% 감소시켰고 겉보기 밀도를 5% 상승시켰다.

### Abstract

In this study, high-density carbon blocks were manufactured using coke, binder pitch, and impregnated pitch, then the effect of pitch fluidity on the densification of carbon blocks during the impregnation process was investigated. A green block was manufactured through high-pressure figuration of coke and binder pitch, and a carbon block was obtained through a heat treatment process. An impregnation process was performed to remove pores generated by volatilization of the binder pitch during the heat treatment process. The impregnation process was carried out the high-pressure reaction step of impregnating the pitch into the carbon block followed by the pretreatment step of melting the impregnation pitch. Melting of the impregnation pitch was carried out at 140~200 °C, and the viscosity of the impregnation pitch decreased as the heat treatment temperature increased. The decrease in the viscosity of the impregnation pitch improved the fluidity and effectively impregnated the pores inside the carbon block, reducing the porosity of the carbon block by 83% and increasing the apparent density by 5%.

**Keywords:** Needle coke, Pitch, Impregnation, Porosity

## 1. 서 론

흑연블록은 강도가 높고 열적 안정성 및 전기/열 전도성이 우수하

여 도가니, 핵반응기, 베어링, 제철용 전극봉, 방열 소재 등에 사용되고 있다[1-6]. 이러한 흑연블록은 혼련, 성형, 흑연화, 함침, 고순도화 과정을 거쳐 제조되며, 각각의 공정에 따라 제조된 흑연블록의 특성이 달라진다. 특히 함침 공정은 흑연블록의 고밀도화를 유도하고 강도, 열전도도 등의 성능을 향상시키기 위한 필수적인 공정이다[7-9].

흑연블록은 펠러와 바인더를 혼합하고 성형하여 제조한다. 펠러는 주로 탄소 물질인 코크스와 흑연을 사용하고 바인더는 일정 온도에서 유동성 및 접착력을 갖는 바인더 피치를 주로 사용한다. 바인더 피치는 100~120 °C 연화점을 갖는 것을 사용하며, 바인더 피치의 탄화 수율, 탄소 함유량 등의 특성은 흑연블록 또는 탄소 블록에 영향을 미치게 된다[10]. 혼련된 코크스/바인더 피치는 CIP (Cold Isotropic Press),

† Corresponding Author: Ji Sun Im: University of Science and Technology (UST), Advanced Materials and Chemical Engineering, Daejeon 34113, Republic of Korea;  
Seok Chang Kang: Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT) C1 Gas & carbon Convergent Research, Daejeon 34114, Republic of Korea  
Tel: Ji Sun Im: +82-42-860-7366; Seok Chang Kang: +82-42-860-7642  
e-mail: Ji Sun Im: jsim@kRICT.re.kr; Seok Chang Kang: sckang@kRICT.re.kr

hot press, extrusion과 같은 성형 공정을 통해 그린블록이 제조된다 [11-13]. 흑연블록은 이러한 그린블록을 고온에서 열처리하여 제조된다. 열처리 과정에서 바인더 피치에 함유되어 있는 다수의 저분자량 성분들이 휘발되는 과정에서 바인더 피치의 질량 감소가 일어나고, 기공이 생성된다. 이러한 기공의 생성으로 인하여 흑연블록의 열적 안정성, 열/전기 전도도, 강도 등이 감소하게 되며, 이를 방지하기 위하여 기공을 제거하기 위한 공정인 함침 공정을 거치게 된다[14].

함침 공정은 함침제의 종류에 따라 크게 기상법 및 액상법으로 분류된다. 기상법은 기체 상태인 탄화수소를 함침제로 이용하는 방법으로 상대적으로 낮은 압력에서 함침을 진행할 수 있지만 균일성이 떨어지는 단점이 있다. 액체 상태인 함침제를 사용하는 액상법은 높은 온도와 압력에서 수행되는 단점이 있지만 균일하게 함침이 되는 장점이 있다.

액상의 함침제를 이용하는 함침 공정은 함침제의 점도, 표면장력, 탄화 수율 등의 물리적인 특성 및 함침제와 탄소 블록 사이의 반응성 및 접촉각 등의 상호 작용에 따라 함침 정도가 변화한다. 함침제는 에폭시 수지, 레진, 피치 등이 주로 사용된다. 이 중 피치는 높은 탄화 수율을 가지고 있으며 탄소 블록과의 반응성 및 접촉각 등의 상호작용이 높기 때문에 함침제로 주로 사용되고 있다. 탄소 블록의 함침은 열처리 과정 중 생성된 기공에 더 많은 함침제가 침투할수록 기공을 제거할 수 있다. 열처리 과정 중에 생성된 탄소 블록의 기공을 제거하기 위해서는 함침제의 침투가 용이하여야 한다. 함침제의 침투는 함침제의 점도가 낮을수록 유리하다. 때문에 함침 공정에서 함침 피치의 점도는 매우 중요한 요소이다. 함침 피치의 점도는 온도가 높을수록 감소하는 경향을 보이지만, 일정 온도 이상에서는 저분자량 성분이 휘발되어 점도가 증가하게 된다. 때문에 함침 공정은 함침에 적합한 온도를 확인하는 것은 매우 중요하다[15,16].

본 연구에서는 탄소 블록의 기공을 함침 피치를 이용하여 조절하였다. 사용된 함침 피치의 최적 함침 조건을 확인하기 위하여 다양한 온도에서 함침 공정을 진행하였다. 함침 공정의 온도에 따른 함침 피치의 점도 특성을 평가하였다. 함침 피치의 점도는 연화점보다 약 120 °C 높은 온도에서 가장 낮은 값을 보였다. 피치의 점도에 따라 함침 후 블록의 기공률 및 pore size diameter를 확인하여 함침된 탄소 블록의 특성을 평가하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 탄소 소재의 원료 및 탄소 블록의 제조

탄소 블록을 제조하기 위하여 폴타르를 원료로 이용하여 제조된 침상 코크스(PMC tech, korea)를 필러로 이용하였으며, 폴타르게 바인더

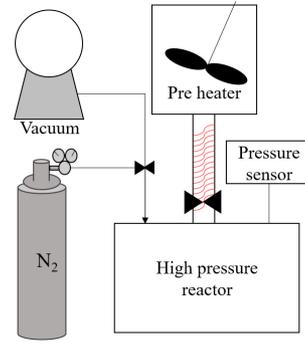


Figure 1. Scheme of Impregnation reactor.

피치(handan, china)를 바인더로 이용하였다. 제조된 탄소 블록의 기공을 조절하기 위하여 함침 피치(handan, china)를 이용하였다. 바인더 피치와 함침 피치의 물성 차이는 table 1에 나타내었다. 바인더 피치는 함침 피치보다 연화점 및 탄화 수율이 높게 나타났으며, C/H 비율 또한 높게 나타났다. 탄소 블록은 침상코크스와 바인더 피치를 8:2의 질량 비율로 혼합한 후 150 °C에서 2시간 동안 혼련하였다. 혼련된 시료는 10 MPa의 압력에서 30분 동안 단일 방향으로 압축하여 성형을 하였다. 성형된 블록은 900 °C (5 °C/분)에서 1시간 탄화하여 탄소 블록을 제조하였다.

### 2.2. 탄소 블록의 기공 조절을 위한 함침 공정

함침 반응을 위한 반응기는 상단부와 하단부로 분리되어 있으며 (figure 1), 상단부는 함침 피치의 용융을 위한 전처리 반응기이고, 하단부는 함침이 일어나는 고압 반응기이다. 전처리 반응기는 함침 피치의 유동성을 부여하기 위한 반응기로, 200 g의 함침 피치를 전처리 반응기에 넣은 후 함침 피치의 점도를 조절하기 위하여 반응기의 온도를 140 °C, 160 °C, 180 °C, 200 °C까지 승온 후 1시간 동안 교반하였다. 하단부에 있는 고압 반응기는 실제로 함침이 일어나는 공간으로서 감압과 가압이 가능하게 설계되었다.

Figure 2는 고압 반응기에서 사용된 시간에 따른 온도와 압력 조건 그래프이다. 고압 반응기에 제조된 탄소 블록을 넣은 후 탄소 블록의 기공에 남아 있는 기체를 제거하기 위해서 전처리 반응기의 함침 온도까지 감압하였다. 전처리 온도에 도달한 후 전처리 반응기와 고압 반응기 사이에 연결된 관을 이용하여 함침 피치를 주입시켰다. 함침 피치가 고압 반응기에 주입된 후 고압 반응기의 압력을 50 bar까지 질소 가스를 이용하여 가압하여 1시간 동안 유지하였다. 함침 온도에 따라 샘플 이름을 I140, I160, I180, I200으로 나타냈다. 함침이 완료된

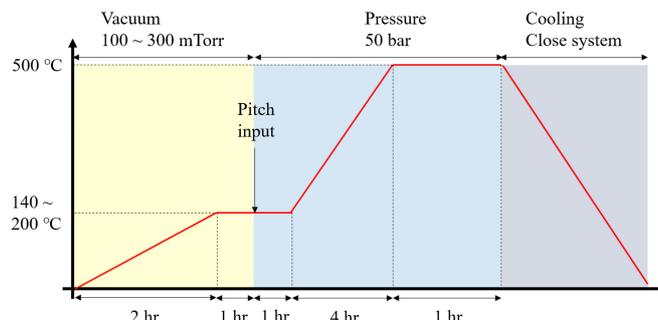


Figure 2. Temperature/pressure conditions according to time of impregnation reaction.

탄소 블록은 500 °C에서 1차 열처리하여 함침된 함침 피치를 코킹시켰다. 코킹이 완료된 탄소 블록은 900 °C에서 추가적으로 탄화하여 남아 있는 저분자량 성분을 제거하였다. 함침 피치로 인하여 표면에 남아 있는 불규칙한 탄화 피치는 연마를 이용하여 제거하였다.

### 2.3. 함침/바인더 피치 및 탄소 블록 분석

탄소 재료의 원소 조성을 확인하기 위해서 원소 분석기(elemental analyzer, EA, Thermo Scientific Flash 2000)를 이용하여 원소 분석을 실시하였다. 피치의 연화점은 ASTM D3416에 준하여 연화점 분석기(DP-70, Mettler Toledo)를 이용하여 측정하였으며, 탄화 수율은 ASTM D2416에 따라 측정하였다. 함침 피치의 점도는 디지털 점도계(TH-L3 plus, CAS)를 사용하여 온도에 따른 점도를 측정하였다. 피치 표면의 관능기를 조사하기 위하여 푸리에 변환 적외선 분광기(FT-IR, Bruker ALPHA-T infrared spectral analyzer)를 이용하였다.

블록 밀도는 2가지 방법으로 측정하였다. 진밀도는 헬륨 밀도(AccuPyc 1340, Micromeritics)로 측정하였으며, 겉보기 밀도는 Archimedes 방법을 사용하여 측정하였다. 기공률은 수은 함침 공법으로 측정하였으며, 측정 장비는 기공률 측정기(AutoPore IV 9500, Micromeritics)를 사용하였으며, 측정 압력은 3 - 10000 psi로 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 함침 공정에 사용된 함침 피치

탄소 블록 제조 공정 중 바인더와 함침제로 석탄계 피치 사용하였다. Table 1은 사용된 바인더 피치와 함침 피치의 물리·화학적 특성을 나타냈다. 바인더 피치의 연화점은 103 °C, 함침 피치의 연화점은 81 °C로 측정되었다. ASTM D2416에 따라 측정된 탄화 수율은 각각 53.16%와 39.12%였다. 상대적으로 연화점이 높은 바인더 피치의 탄화 수율이 높았으며, 이는 낮은 연화점의 함침 피치가 더 낮은 분자량 분포도를 갖기 때문이라고 판단된다. 원소 분석에서는 함침 피치의 C/H 값은 0.92로 바인더 피치의 1.77보다 낮았으며, 이는 상대적으로 함침 피치가 방향족 성분보다는 지방족 성분 함량이 더 높을 것으로 예측된다. 헤테로 원자인 질소, 황, 산소의 함량에서 질소와 황의 함량은 바인더 피치가 각각 1.1, 3.8배 많이 있었지만 산소의 경우 함침 피치가 4.9배 많은 것을 확인하였다. 이를 보아 함침 피치를 구성하는 분자 구조는 방향족 고리의 지방족 사슬이나 지방족으로 이루어져 있으며, 이때 관능기는 주로 산소가 함유되어 있는 ether, carboxy, ketone, alcohol 류가 많이 함유되어 있을 것으로 예측된다. 피치의 산소 관능기는 탄화 수율 및 열적 특성을 상승시켜 열처리 후에 질량이 감소하는 것을 방지하는 효과를 가져온다[17]. 상기 내용을 확인하기 위하여 FT-IR 분석을 진행하였으며, figure 3에 함침 피치와 바인더 피치의 FT-IR 그래프를 나타냈다.

Figure 3에 함침 피치와 바인더 피치의 FT-IR 주요 피크를 도시하였다. Aliphatic C-H stretching의 피크를 나타내는 3000 - 2850  $\text{cm}^{-1}$ 에서 함침 피치가 더 높은 피크를 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 그리고 aromatic C-H stretching의 피크를 나타내는 3100 - 3040  $\text{cm}^{-1}$ 에서는 앞서 보인 aliphatic C-H stretching 피크와 비교해서 바인더 피치의 피크가 높게 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 또한 aromatic C-H bending 피크인 900 - 700  $\text{cm}^{-1}$ 에서도 바인더 피치의 피크가 상대적으로 높은 것을 볼 수 있었다. 이 wavenumber는 방향족 고리에 지방족 화합물이 치환되지 않은 상태를 의미한다. 함침 피치의 IR 그래프에서 높은 피크를 보이고 있는 1300 - 1100  $\text{cm}^{-1}$  피크는 C-O 결합을

Table 1. Physical & Chemical Properties of Impregnation/binder Pitch

	Impregnation pitch	Binder pitch	
Softening point (°C)	81	103	
Coking value (wt%)	39.12	53.16	
EA	C	82.93	92.35
	H	7.48	4.35
	N	0.76	0.84
	S	0.18	0.68
	O	8.65	1.78
	C/H	0.92	1.77

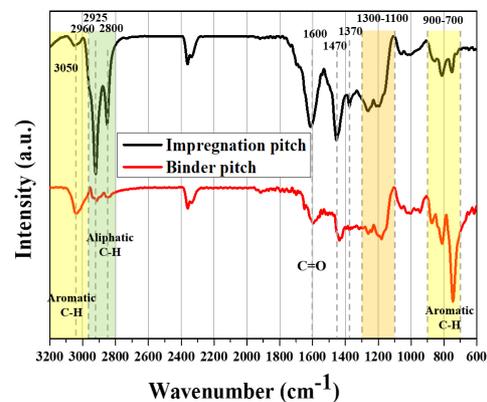


Figure 3. FT-IR of impregnation/binder pitch.

나타내고 있으며, 원소 분석에서 보였던 함침 피치의 높은 산소 함량과 일치하는 것을 확인하였다. 그리고 1600  $\text{cm}^{-1}$ 과 1470  $\text{cm}^{-1}$ 은 각각 C=O 결합과 C-H scissoring 결합을 나타냈다. 결과적으로 함침 피치는 지방족 성분이 많이 함유되어 있고 바인더 피치는 방향족 성분이 많이 함유되어 있는 것을 확인할 수 있었다.

### 3.2. 함침 공정에 따른 탄소 블록의 기공률

함침 피치의 온도에 따른 점도는 figure 4에 나타냈다. 함침 피치의 연화점은 81 °C지만 연화점 부근에서의 점도가 높아 측정되지 않았다. 측정이 가능한 온도인 140 °C에서부터 측정을 시작하였다. 140 °C에서 점도는 대략 12000 cP였으며, 온도가 높아질수록 점도가 낮아지는 것을 확인할 수 있었다. 점도가 200 °C 부근에서 가장 낮은 점도를 나타냈다. 따라서, 함침 공정 온도는 140 °C, 160 °C, 180 °C, 200 °C를 선정하여 진행하였다. 함침 공정이 완료된 탄소 블록의 밀도 특성을 파악하기 위하여 진밀도와 겉보기 밀도를 측정하여 table 2에 나타냈다. Raw 블록의 진밀도는 2.089  $\text{g/cm}^3$ 이었으나, 함침 고정 블록들의 진밀도는 raw 블록보다 조금 감소하여 2.021 ~ 2.075  $\text{g/cm}^3$ 의 값을 나타내는 것을 확인하였다. 하지만 겉보기 밀도의 경우 raw 블록이 1.68  $\text{g/cm}^3$ 이었으나 함침된 블록은 1.740 ~ 1.758  $\text{g/cm}^3$ 으로 증가하는 것을 확인하였다. 이는 raw 블록의 기공 내부에 함침 피치가 침투해 들어가기 때문에 빈 공간이 함침 피치로 채워져 겉보기 밀도가 상승한 것으로 판단된다. 진밀도의 감소는 함침 피치와 바인더 피치를 구성하고 있는 성분에 의해 발생하는 것으로 보인다. 지방족 화합물로 구성되어 있는 함침 피치는 방향족으로 구성된 바인더 피치보다 탄화 후에 더 낮은 분자량을 갖기 때문에 함침된 블록의 진밀도가 raw 블

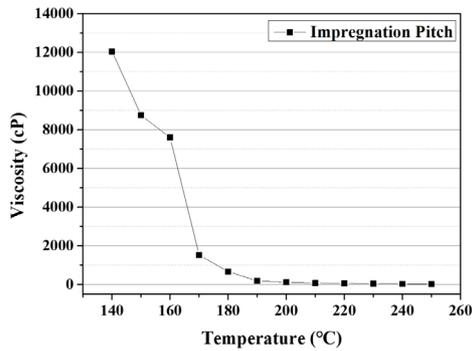


Figure 4. Viscosity of impregnation pitch.

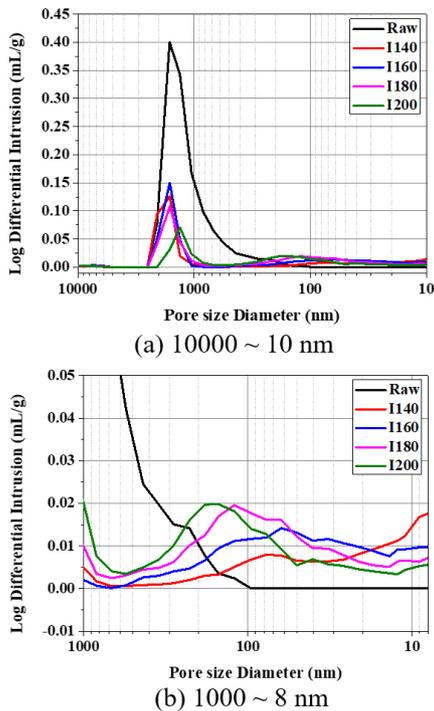


Figure 5. Pore size diameter distribution.

록의 진밀도보다 감소하는 것으로 사료된다. 이는 탄화 수율 측정 결과도 유추가 가능하다.

탄소 블록의 기공률은 raw 블록이 15.15 vol%로 가장 높은 값을 가지고 있으나 함침 공정 이후에 기공이 7.70 ~ 2.59 vol%로 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 함침 공정이 진행된 탄소 블록들은 함침을 하지 않은 raw 블록보다 83~49 % 감소하는 것을 확인할 수 있었으며, pore size에서도 변화가 확인되었다. 하지만 I140, I160, 180 블록들의 기공률은 경향성이 없고 유사한 결과값을 보이는 것을 확인하였다. 이는 각 온도 조건에서 함침이 완료된 후 가압 조건에서 500 °C 코킹을 진행하면서 함침 피치의 점도가 낮아지게 되면서 추가적인 함침이 발생하는 것으로 사료된다.

Figure 5는 탄소 블록들의 pore size diameter 분포도를 나타낸 그래프이다. 모든 탄소 블록이 가지는 가장 큰 pore diameter 분포는 2500 nm이며, I200를 제외하고 가장 많이 분포된 pore diameter 분포는 2000~1000 nm 사이 값인 대략 1600 nm 근방에서 나타나는 것을 확

인하였다. I200 블록은 그보다 작은 1300 nm에서 많은 pore diameter 분포되어 있으며, 낮은 점도를 보인 200 °C에서 함침을 진행했기 때문에 raw 블록 기공 내부로 피치가 상대적으로 수월하게 함침 된 것으로 판단된다. 반대로 낮은 점도에서 함침이 되었던 I140 블록은 상대적으로 큰 pore diameter 영역에서 분포된 것을 확인할 수 있었다. I160와 I180 블록의 경우 1600 nm pore diameter 분포가 가장 많았다. 함침 피치의 점도가 낮아질수록 pore size diameter 분포는 감소하였으며, raw 블록에서는 나타나지 않은 200 nm 이하의 pore diameter 분포가 함침 후에 나타났다. Figure 5(b)는 1000 nm 이하의 pore size diameter 분포도를 나타낸 그래프이다. Raw 블록은 100 nm 이하에서 pore diameter가 나타나지 않았으나 함침 공정 이후 증가하는 것을 확인하였다. Pore size diameter 분포는 함침 온도가 높았던 I200, I180, I160, I140의 순서로 큰 diameter에서 나타났다. 이는 raw 블록의 기공에 함침된 피치의 양이 많을수록 내부에서 저 분자량 성분이 많이 발생하기 때문에 낮은 점도에서 함침된 블록의 pore size diameter가 더 큰 것으로 사료된다.

I140, I160, I180 블록의 기공률은 유사했지만 pore size diameter 분포도에서는 상이한 결과를 보였다. 500 °C 코킹 공정에서 추가적으로 함침이 발생하기 때문에 유사한 기공률을 나타냈지만 이 조건에서는 피치에서 발생하는 저분자량 성분 또한 배출되기 때문에 피치가 블록 내부의 기공 깊은 곳까지 함침되는 것을 방해하여 I200 블록보다 기공률이 높은 것으로 보인다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 인조 흑연블록을 제조하는 과정에서 발생하는 기공을 제어하기 위해서 온도에 따른 함침 공정을 진행하였다. 함침 피치는 온도가 증가하면서 점도가 감소하였고, 200 °C에서 가장 낮은 점도를 나타냈다. 함침 공정은 온도에 따른 점도를 기준으로 설정하였으며, 함침 공정 이후 코킹과 탄화를 통해 함침 피치가 배출되는 것을 방지하였다. 함침 공정 이후 탄소 블록들은 기공률이 감소하였으며, 그 중에서 점도가 가장 낮은 피치로 함침된 I200 블록의 기공률이 가장 낮았다. 하지만 I200 블록을 제외한 함침된 블록들은 6~7 vol %의 유사한 기공률을 나타냈다. 이를 보아 가압 코킹은 높은 점도로 함침하지 못한 피치들이 온도가 증가함에 따라 점도가 낮아져 추가적으로 함침 되기 때문에 유사한 기공률을 형성하는 것으로 보인다. 또한 함침 피치의 점도가 낮을수록 함침되는 피치의 양이 증가하여 탄소 블록의 pore diameter는 감소하는 경향을 보였으나, 일정 영역(500~100 nm)의 분포는 증가하였다. 이는, 함침된 피치의 양이 증가할수록 열처리 공정에서 상대적으로 저분자량 성분 휘발량이 증가하기 때문으로 사료된다. 함침 공정에서 점도는 중요한 영향을 미치는 것을 확인하였으며, 피치가 열처리되는 과정에서 발생하는 저분자량 성분 또한 함침 공정에 중요한 인자임을 확인하였다.

## 감 사

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술연구원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. 20181110200070)

## References

1. L. Xiaowei, R. Jean-Charles, and Y. Suyuan, Effect of temperature

- on graphite oxidation behavior, *Nucl. Eng. Des.* **227**, 273-280 (2004).
2. P. Y. Brisson, H. Darmstadt, M. Fafard, A. Adnot, G. Servant, and G. Soucy, X-ray photoelectron spectroscopy study of sodium reactions in carbon cathode blocks of aluminium oxide reduction cells, *Carbon* **44**, 1438-1447 (2006).
  3. L. Chin-Tu and M. D. Bryant, Thermoelastic evolution of contact area and mound temperatures in carbon graphite electrical brushes, *Wear* **174**, 137-146 (1994).
  4. T. Ding, G. Chen, J. Bu, and W. Zhang, Effect of temperature and arc discharge on friction and wear behaviours of carbon strip/copper contact wire in pantograph-catenary systems, *Wear* **271**, 1629-1636 (2011).
  5. J. W. Lin and H. C. Chang, Measurement of friction surface and wear rate between a carbon graphite brush and a copper ring, *Tribol. Trans.* **54**, 887-894 (2011).
  6. Z. Liu, J. Zhang, H. Zuo, and T. Yang, Recent progress on long service life design of Chinese blast furnace hearth, *ISIJ Int.* **52**, 1713-1723 (2012).
  7. M. Li, Y. Zhou, Y. Liao, and H. Zhou, Effect of defects on thermal conductivity of graphene/epoxy nanocomposites, *Carbon* **130**, 295-303 (2018).
  8. Q. Li, Y. Guo, W. Li, S. Qiu, C. Zhu, X. Wei, M. Chen, C. Liu, S. Liao, and Y. Gong Ultrahigh Thermal Conductivity of Assembled Aligned Multilayer Graphene/Epoxy Composite, *Chem. Mater.* **26**, 4459-4465 (2014).
  9. N. Tiwari, N. Agarwal, D. Roy, K. Mukhopadhyay, and N.E. Prasad, Tailor Made Conductivities of Polymer Matrix for Thermal Management: Design and Development of Three-Dimensional Carbonaceous Nanostructures, *Ind. Eng. Chem. Res.* **56**, 672-679 (2017).
  10. E. Fitzer, The future of carbon-carbon composites, *Carbon* **25**, 163-190 (1987).
  11. H. O. Pierson, *Handbook of carbon, graphite, diamonds and fullerenes: processing, properties and applications*, William Andrew, Norwich (2012).
  12. M. Inagaki and F. Kang, *Materials science and engineering of carbon: fundamentals*, Butterworth-Heinemann, Oxford, (2014).
  13. J. E. Choi, S. Ko, and Y. P. Jeon Preparation of petroleum impregnating pitches from pyrolysis fuel oil using two-step heat treatments, *Carbon Lett.* **29**, 1 (2019).
  14. J. C. Lee, K. S. Shin, D. Y. Lee, B. G. Kim, S. J. Shim, Y. S. Lim, and Y. J. Chung, A Study on the Preparation and Characterization of Carbon Fiber Composite Filter, *J. Korean Ceram. Soc.* **32**, 989-994 (1995).
  15. P. D. Matzinos, J. W. Patrick, and A. Walker, Coal-tar pitch as a matrix precursor for 2-D C/C composites, *Carbon* **34**, 639-644 (1996).
  16. R. Menendez, J. J. Fernandez, J. Bermejo, V. Cebolla, I. Mochida, and Y. Korai, The role of carbon black/coal-tar pitch interactions in the early stage of carbonization, *Carbon* **34**, 895-902 (1996).
  17. J. H. Kim, A. Y. Jo, Y. J. Choi, K. B. Lee, J. S. Im, and B. C. Bai, Improving the mechanical strength of carbon-carbon composites by oxidative stabilization, *J. Mater. Res. Technol.* **9**, 16513-16521 (2020).

#### Authors

- Jong Hoon Cho; M.Sc., Researcher Student, C1 Gas & carbon Convergent Research, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), Daejeon 34114, Republic of Korea; chojh63@kRICT.re.kr  
Hye In Hwang; B.Sc., Researcher Student, C1 Gas & carbon Convergent Research, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), Daejeon 34114, Republic of Korea; gpdls474@kRICT.re.kr  
Ji Hong Kim; M.Sc., Researcher Student, C1 Gas & carbon Convergent Research, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), Daejeon 34114, Republic of Korea; pic10@kRICT.re.kr  
Young-Seak Lee; Ph.D., Professor, Department of applied chemical engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Republic of Korea; youngslee@cnu.ac.kr  
Ji Sun Im; Ph.D., Senior Researcher, Advanced Materials and Chemical Engineering, University of Science and Technology (UST), Daejeon 34113, Republic of Korea; jsim@kRICT.re.kr  
Seok Chang Kang; Ph.D., Senior Researcher, C1 Gas & carbon Convergent Research, Korea Research Institute of Chemical Technology (KRICT), Daejeon 34114, Republic of Korea; sckang@kRICT.re.kr