



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2013년08월26일
(11) 등록번호 10-1298739
(24) 등록일자 2013년08월14일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 101/00 (2006.01) C08K 3/04 (2006.01)
C08K 7/00 (2006.01) C08J 5/00 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2011-0118844
(22) 출원일자 2011년11월15일
심사청구일자 2011년11월15일
(65) 공개번호 10-2013-0053203
(43) 공개일자 2013년05월23일
(56) 선행기술조사문헌
KR100885653 B1
KR1020090041081 A
JP06207089 A
JP2006510763 A

(73) 특허권자
한국화학연구원
대전광역시 유성구 가정로 141 (장동)
(72) 발명자
유영재
서울특별시 송파구 오금로35길 17, 현대아파트 2
8동 1303호 (오금동)
이성구
대전광역시 유성구 어은로 57, 110동 1201호 (어
은동, 한빛아파트)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
이원희

전체 청구항 수 : 총 7 항

심사관 : 김동원

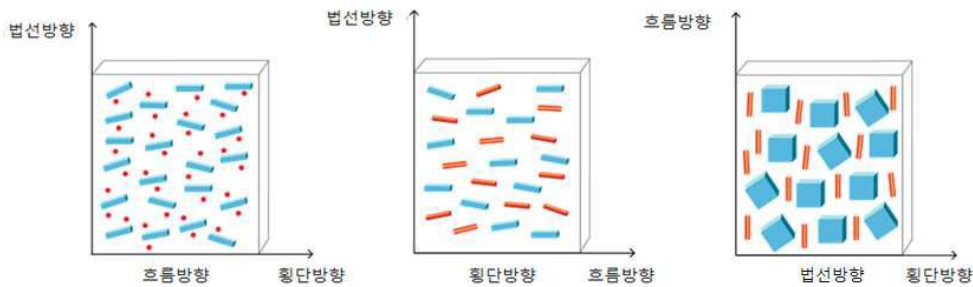
(54) 발명의 명칭 **형태가 다른 2종의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물 및 이의 제조방법**

(57) 요약

본 발명은 형태가 서로 다른 2종의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물 및 이의 제조방법에 관한 것으로 더욱 구체적으로는 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지; 및 20 내지 80 중량%의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물에 있어서, 상기 열전도성 필러는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

본 발명에서 제조되는 고분자 조성물은 판상형과 섬유형의 형상을 가지는 2종의 열전도성 필러를 동시에 사용하여, 열전도성 필러간의 접촉율을 향상시키고, 고분자 내에 포함되어 있는 열전도성 필러가 방향성을 가지게 됨으로써 열전도도 및 기계적 강도가 우수한 효과가 있다. 또한, 열전도성 필러로 상용화된 열전도성 필러를 사용하고, 제조공정이 단순하기 때문에 제조단가가 낮아 대량생산할 수 있어 전자부품산업, 반도체 산업 등에 광범위하게 활용될 수 있다.

대표도 - 도2



(72) 발명자

원종찬

대전광역시 서구 둔산남로 127, 204동 302호 (둔산동, 목련아파트)

이재홍

대전광역시 유성구 노은동 열매마을아파트 802-1701

전병국

서울특별시 강동구 상암로12길 13, 101동 1413호 (천호동, 삼익아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 K00060053_55509
 부처명 지식경제부
 연구사업명 부품소재기술개발사업
 연구과제명 고효율화 열방출 나노구조의 정밀제어 기술(3차)
 주관기관 한국화학연구원
 연구기간 2011.06.01 ~ 2012.05.31

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 SI-1104
 부처명 기획예산처
 연구사업명 정부출연 일반사업
 연구과제명 화학소재특성 고속개발 기반구축사업
 주관기관 한국화학연구원
 연구기간 2011.01.01 ~ 2011.12.31

특허청구의 범위

청구항 1

20 내지 80 중량% 의 내열성 고분자 수지; 및 20 내지 80 중량% 의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물에 있어서,

상기 내열성 고분자 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC) 및 폴리아마이드(PA)를 포함하는 군으로부터 선택되는 1종이고,

상기 열전도성 필러는, 카본계 필러이며, 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 2

삭제

청구항 3

제 1항에 있어서, 상기 열전도성 필러는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러가 중량비로 1:0.15 ~ 1:3으로 포함되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 4

삭제

청구항 5

삭제

청구항 6

20 내지 80 중량% 의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량% 의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 1); 및

상기 단계 1에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량% 의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 2); 를 포함하되,

상기 내열성 고분자 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC) 및 폴리아마이드(PA)를 포함하는 군으로부터 선택되는 1종이고,

상기 열전도성 필러는, 카본계 필러이며, 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.

청구항 7

제 6항에 있어서, 상기 단계 1 및 단계 2에서 내열성 고분자 수지에 혼합되는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러의 혼합비율은 중량비로 1:0.15 ~ 1:3 인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.

청구항 8

제 6항에 있어서, 상기 단계 1 및 단계 2의 용융혼합은 250 ~ 350 °C의 온도에서 수행되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.

청구항 9

20 내지 80 중량% 의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량% 의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 A);

상기 단계 A에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량% 의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 B); 및

상기 단계 B에서 혼합된 혼합물을 사출성형하는 단계 (단계 C);를 포함하되,

상기 내열성 고분자 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC) 및 폴리아마이드(PA)를 포함하는 군으로부터 선택되는 1종이고,

상기 열전도성 필러는, 카본계 필러이며, 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물을 포함하는 성형품의 제조방법.

청구항 10

제 9항의 방법으로 제조되는 고분자 조성물을 포함하는 성형품.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 형태가 서로 다른 2종의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 최근 스마트폰, 컴퓨터 등의 전자기기가 소형화되고 가벼워짐에 따라 반도체 패키지의 고밀도 패키징과 직접회로에서 소자의 고집적화 및 고속화 등이 요구되고 있다. 이에 따라, 각종 전자부품에서 발생하는 열을 외부로 방출하여 열에 의한 부품 손상을 방지하는 것으로 방열판 또는 방열시트에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다.

[0003] 종래에 사용되는 방열판으로는 열전도성이 좋은 금속 예를 들면, 알루미늄과 같은 방열판이 사용되었다. 하지만 방열판 소재로 금속을 사용하게 되면 낮은 성형성, 생산성 및 부품 디자인의 한계가 있어 이를 대체할 수 있는 물질에 대한 연구가 진행되고 있다.

[0004] 또한, 방열시트는 발광다이오드(LED) 또는 전지 및 인쇄회로기판(PCB) 등의 열을 발생시키는 부품이나 제품에 부착되어 높은 방열 효과를 내는 제품으로 방열시트의 소재로서 열전도성 고분자가 개발되었다.

[0005] 상기 열전도성 고분자는 열저항체인 고분자에 높은 열전도도를 가지는 열전도성 필러를 첨가시킴으로써 제조된다. 또한, 상기 열전도성 고분자 소재의 개발은 사출성형이 가능하고 적정 수준의 물성을 확보하기 위하여 최소의 열전도성 필러 함량으로 최적의 열전도도를 얻기 위한 방향으로 진행되고 있다.

[0006] 최근 그린스타(주)는 카본나노튜브(CNT)를 아크릴바인더에 결합하여 열전도성을 극대화한 그래파이트 방열시트를 개발하였다. 상기 그래파이트 방열시트는 그린스타(주)에서 자체 개발한 카본나노튜브 분산기술과 아크릴점착제 제조기술을 활용해 방열효율을 4.546 W/m·K 수준으로 높인 것이 특징이다.

- [0007] 종래 열전도성 고분자의 제조방법으로는 다음과 같은 기술들이 공지되어있다.
- [0008] 대한민국 공개특허 제10-2011-0079146호(공개일:2011.07.07)는 백색도, 열전도성 및 압출 성형성이 우수한 폴리 아미이드계 수지 조성물 및 그 제조방법에 관한 것으로, 폴리아미이드 수지에 열전도 필러, 충전제 및 폴리아마 이드와 상용성이 있으며 중량 평균 분자량이 500,000 내지 5,000,000인 열가소성 수지를 포함하는 백색도, 열전 도성 및 압출 성형성이 우수한 폴리아미이드계 수지 조성물을 제조하는 방법에 관한 것이다(특허문헌 1). 상기 발명은 열전도성 필러로 보론니트라이드를 사용하여 높은 백색도와 열전도성을 동시에 획득할 수 있지만, 제조 되는 열전도성 고분자의 기계적 강도 및 성형성을 보완하기 위하여 별도의 충전제, 백색안료, 및 주쇄로 사용하 는 폴리아미이드 수지와 상용성이 있는 고분자 수지를 사용한다.
- [0009] 또한, 대한민국 공개특허 제10-2009-0088134호(공개일:2009.08.19)는 내열도, 반사율 및 열전도도가 우수한 수 지 조성물 및 제조방법에 관한 것으로, 용융점이 270 ℃ 이상인 결정성 수지 40 내지 70 중량% 와 백색 무기물 5 내지 50 중량% 와 열전도성 필러 1 내지 40 중량% 와 강성 증가제 5 내지 30 중량% 를 배럴온도 280 내지 360 ℃의 이축 압출기에서 압출혼합하는 단계를 통해 펠렛 형태로 제조하는 단계를 포함하는 발광 다이오드 패키징 용 소재의 제조방법에 관한 것이다(특허문헌 2). 상기 발명에서 제조되는 고분자 조성물의 평균 열전도율은 0.5 W/m·K 이며, 기계적인 물성을 보완하기 위하여 추가적으로 강성 증가제를 사용한다.
- [0010] 나아가, D. Khastgir 등은 모양과 크기가 다른 탄소계 필러가 에틸렌초산비닐공중합체의 전기 전도도 등과 관련 된 물성에 끼치는 영향에 대한 실험을 수행하였다(비특허문헌 1). 상기 실험에서는 열전도성 필러로 흑연, 쇼트 탄소섬유 및 다중벽 탄소나노튜브를 사용하였으며, 상기 실험의 결과로 다중벽 탄소나노튜브 및 쇼트탄소섬유를 사용하여 제조된 고분자 조성물의 열전도도가 높게 나타났다. 하지만, 다중벽 탄소나노튜브 및 쇼트탄소섬유의 경우 고가의 물질로서 상기 열전도성 필러를 사용하여 제조된 열전도성 고분자는 대량생산 및 상용화가 어려운 점이 있다.
- [0011] 이에, 본 발명자들은 내열성 고분자 수지에 판상형과 섬유형의 형상을 가지는 2종의 열전도성 필러를 동시에 사 용함으로써, 열전도성 필러간의 접촉율이 향상되고, 고분자 내에 포함되어 있는 열전도성 필러가 방향성을 가지 게 되어 열전도도 및 기계적 강도가 우수한 고분자 조성물을 제조할 수 있음을 알아내고 본 발명을 완성하였다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0012] (특허문헌 0001) KR 10-2011-0079146 A 2011.07.07, 5 ~ 10쪽.
 (특허문헌 0002) KR 10-2009-0088134 A 2009.08.19, 5, 8, 9쪽.

비특허문헌

- [0013] (비특허문헌 0001) N.J.S. Sohi, Sambhu Bhadra and D. Khastgir, The effect of different carbon fillers on the electrical conductivity of ethylene vinyl acetate copolymer-based composites and the applicability of different conductivity models, Carbon volume 49, issue 4, April 2011, 1349-1350, 1359-1360.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0014] 본 발명의 목적은 열전도도가 우수하고, 기계적 강도가 우수한 고분자 조성물 및 이로부터 제조되는 성형품을 제공하는 데 있다.
- [0015] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 고분자 조성물 및 성형품의 제조방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

- [0016] 상기의 과제를 해결하기 위해, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지; 및 20 내지 80 중량%의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물에 있어서,
- [0017] 상기 열전도성 필러는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물 및 이로부터 제조되는 성형품을 제공한다.
- [0018] 또한, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량%의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 1); 및 상기 단계 1에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량%의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 2); 를 포함하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

- [0019] 본 발명에서 제조되는 고분자 조성물은 판상형과 섬유형의 형상을 가지는 2종의 열전도성 필러를 동시에 사용하여, 열전도성 필러간의 접촉율을 향상시키고, 고분자 조성물 내에서 열전도성 필러가 방향성을 가지게 됨으로써 열전도도 및 기계적 강도가 우수한 효과가 있다. 또한, 열전도성 필러로 상용화된 열전도성 필러를 사용하고, 제조공정이 단순하기 때문에 제조단가가 낮아 대량생산할 수 있어 전자부품산업, 반도체 산업 등에 광범위하게 활용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0020] 도 1은 본 발명에서 제조된 고분자 조성물을 도식화한 것이다.
- 도 2는 본 발명에서 제조된 고분자 조성물 내의 열전도성 필러들을 도식화 한 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0021] 본 발명은 형태가 서로 다른 2종의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물을 제공한다.
- [0022] 또한, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량%의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 1); 및
- [0023] 상기 단계 1에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량%의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 2); 를 포함하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.
- [0024] 나아가, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량%의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 A);
- [0025] 상기 단계 A에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량%의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 B); 및
- [0026] 상기 단계 B에서 혼합된 혼합물을 사출성형하는 단계 (단계 C); 를 포함하는 고분자 조성물을 포함하는 성형품의 제조방법을 제공한다.

- [0027] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0028] 본 발명에 따른 고분자 조성물은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지; 및 20 내지 80 중량%의 열전도성 필러를 포함하며, 내열성 고분자 수지에 혼합되는 열전도성 필러는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러를 포함한다.
- [0029] 본 발명에 따른 고분자 조성물에는 열전도성 필러가 20 내지 80 중량%로 포함되는 것이 바람직하다. 고분자 조성물에 열전도성 필러가 20 중량% 미만으로 포함되는 경우에는 제조되는 고분자 조성물의 열전도도 및 기계적 강도가 떨어지는 문제점이 있고, 80 중량%를 초과하여 포함되는 경우에는 제조되는 고분자 조성물의 점도가 지나치게 높아져 성형성이 떨어지는 문제가 있다.
- [0030] 본 발명에 따른 고분자 조성물에 포함되는 내열성 고분자 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC) 및 폴리아마이드(PA) 등으로부터 1종을 선택하여 사용할 수 있으나, 200 °C 이상의 고온에서 기계적, 전기적 성질을 포함하는 물리적 성질을 유지할 수 있는 고분자 물질이면 제한 없이 사용할 수 있다.
- [0031] 본 발명에서 사용되는 내열성 고분자 수지 중 액정고분자(LCP)는 용융시 액정상을 나타내는 고분자로서, 대표적으로 아로마틱 구조를 포함하는 폴리에스테르계 수지를 사용하며, 내열성, 강성, 안정성 등이 뛰어나 전자부품이나 정밀성형 부품 등에 이용된다. 상기 액정상이란 고체가 녹아 액체가 되었을 때, 입자의 위치질서는 없어지지만 방향질서는 약간 남아있는 것을 말한다. 따라서, 액정고분자를 녹여 액정상을 형성시켜서 흐르는 동안에 굳히게 되면, 고분자 사슬이 일정 방향으로 배향된 채로 굳어져 탁월한 물성을 지닌 고체상을 얻을 수 있다.
- [0032] 내열성 고분자 수지에 혼합되는 열전도성 필러는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러로 구성될 수 있으나, 상기 열전도성 필러의 형상은 제조되는 고분자 조성물 내에서 방향성을 가질 수 있고, 필러 간의 접촉율을 향상시킬 수 있는 형태라면 이에 제한하지 않는다.
- [0033] 상기에서 방향성이란, 예를 들면, 일정한 방향으로 열전도성 필러가 배열되는 것을 말한다. 상세히 말하면, 외부에서 공급된 열이 고분자 내에서 이동한다고 가정했을 때, 열저항체인 고분자는 열을 전달할 수 있는 매개체가 없어 고분자 내에서 이동하는 열은 대부분 손실된다. 하지만 상기 고분자가 열전도성 필러를 포함할 경우에는 열전도성 필러가 열을 전달하는 매개체가 되어 열이 외부로 이동할 수 있게 된다. 따라서, 외부에서 공급된 열은 열전도성 필러간의 접촉율이 늘어나면 더 효과적으로 외부로 방출할 수 있게 된다.
- [0034] 이때, 방향성을 고려하면, 상기 외부에서 공급된 열을 일정한 방향으로 전달시키고자 할 때, 예를 들면, Y축 방향으로 열이 효과적으로 전달되기 위해서는 고분자 내에 포함되어있는 열전도성 필러가 Y축 방향으로 정렬될 수 있을 때, 즉, 열전도성 필러가 고분자 내에서 일정한 방향성을 가질 수 있을 때 상기 목적을 달성할 수 있게 된다.
- [0035] 본 발명에서는 판상형 및 섬유형의 열전도성 필러를 혼합하여 열전도성 필러로 사용함으로써, 고분자 내의 열전도성 필러들이 서로 근접한 열전도성 필러에 영향을 주어 일정방향으로 배열될 수 있어 제조되는 고분자 조성물의 열전도도가 향상될 수 있다.
- [0036] 본 발명에 따른 고분자 조성물에 포함되는 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러로는 카본계 필러를 사용할 수 있으나, 판상형 및 섬유형의 열전도성 필러를 혼합하여 사용하였을 때, 제조되는 고분자 조성물의 열전도도 및 기계적 강도를 향상시킬 수 있는 열전도성 필러라면 이에 제한하지 않는다. 예를 들면, 고분자 조성물에 포함되는 판상형 열전도성 필러로는 그래파이트(graphite)를 사용할 수 있으며, 섬유형 열전도성 필러로는 탄소섬유를 사용할 수 있다.
- [0037] 상기 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러는 내열성 고분자 수지에 1:0.1 ~ 1:3의 중량비로 혼합되는 것이 바람직하며, 상기 비율에 의해 혼합될 시 단일 필러를 사용하는 경우보다 향상된 열전도도를 얻을 수

있다. 보다 바람직하게는, 판상형 열전도성 필러 및 섬유형 열전도성 필러가 내열성 고분자 수지에 1:0.4 ~ 1:1.5의 중량비로 혼합될 수 있다.

- [0038] 또한, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량%의 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 1); 및
- [0039] 상기 단계 1에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량%의 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계 (단계 2);를 포함하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.
- [0040] 이하, 본 발명에 따른 고분자 조성물의 제조방법을 단계별로 더욱 상세하게 설명한다.
- [0041] 본 발명에 있어서, 단계 1은 내열성 고분자 수지에 판상형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계이다. 상기 단계에서, 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러는 균일하게 혼합된다.
- [0042] 상기 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러의 용융혼합은 이축압출기(twin-screw extruder)와 같은 장치를 이용하여 공지된 방법에 따라 수행될 수 있다. 한편, 상기 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러의 혼합은 용융공정에 의하여 진행되는 바, 용매를 전혀 사용하지 않기 때문에 환경친화적인 공정이며, 공정이 단순하다.
- [0043] 본 발명의 제조방법에서 사용되는 내열성 고분자 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC) 및 폴리아마이드(PA) 등으로부터 1종을 선택하여 사용할 수 있으나, 200 °C 이상의 고온에서 기계적, 전기적 성질을 포함하는 물리적 성질을 유지할 수 있는 고분자 물질이면 제한 없이 사용할 수 있다.
- [0044] 또한, 내열성 고분자 수지에 혼합되는 판상형 열전도성 필러는 카본계 필러를 사용할 수 있으나, 판상형 및 섬유형의 열전도성 필러를 혼합하여 사용하였을 때, 제조되는 고분자 조성물의 열전도도 및 기계적 강도를 향상시킬 수 있는 필러라면 이에 한정되지 않는다. 예를 들면, 그래파이트(graphite)를 사용할 수 있다.
- [0045] 본 발명의 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러의 용융혼합은 250 내지 350 °C에서 수행되는 것이 바람직하다. 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러가 250 °C 미만에서 용융혼합되면, 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러간의 혼합이 균일하게 이루어지지 않는 문제점이 있고, 350 °C를 초과하는 경우 내열성 고분자 수지의 열분해에 따라 물성이 저하되는 문제가 있다.
- [0046] 한편, 상기 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필러의 혼합은 상기의 온도 범위에 반드시 한정되는 것은 아니며, 내열성 고분자 수지 및 사용하는 열전도성 필러에 따라 당업자가 적절히 선택할 수 있다.
- [0047] 본 발명에 있어서, 단계 2는 상기 단계 1에서 균일하게 혼합된 혼합물에 섬유형 열전도성 필러를 용융혼합하는 단계이다.
- [0048] 상기 섬유형 열전도성 필러의 용융혼합은 단축압출기(single-screw extruder)와 같은 장치를 이용하여 공지된 방법에 따라 수행될 수 있으며, 상기의 혼합과정에서 섬유형 열전도성 필러의 마모를 최소화할 수 있으면 이에 제한되지 않는다.
- [0049] 상기 단계 1에서 혼합된 혼합물에 첨가되는 섬유형 열전도성 필러는 카본계 필러를 사용할 수 있으나, 판상형 및 섬유형의 열전도성 필러를 혼합하여 사용하였을 때, 제조되는 고분자 조성물의 열전도도 및 기계적 강도를

향상시킬 수 있는 필터라면 이에 제한되지 않는다. 예를 들면, 탄소섬유를 사용할 수 있다.

- [0050] 본 발명의 상기 단계 1에서 제조된 혼합물과 섬유형 열전도성 필터의 용융혼합은 250 내지 350 °C에서 수행되는 것이 바람직하다. 상기 단계 1에서 제조된 혼합물과 섬유형 열전도성 필터가 250 °C 미만에서 용융혼합되면, 내열성 고분자 수지 및 판상형 열전도성 필터의 혼합물과 섬유형 열전도성 필터간의 혼합이 균일하게 이루어지지 않는 문제점이 있고, 350 °C를 초과하는 경우 내열성 고분자 수지의 열분해에 따라 물성이 저하되는 문제가 있다.
- [0051] 한편, 상기 내열성 고분자 수지 및 판상형 열전도성 필터의 혼합물과 섬유형 열전도성 필터의 용융혼합은 상기의 온도 범위에 반드시 한정되는 것은 아니며, 내열성 고분자 수지 및 사용하는 열전도성 필터에 따라 당업자가 적절히 선택할 수 있다.
- [0052] 상기 단계 1 및 단계 2에서 내열성 고분자 수지에 혼합되는 판상형 열전도성 필터 및 섬유형 열전도성 필터의 혼합비율은 1:0.1 ~ 1:3의 중량비로 조절될 수 있다.
- [0053] 나아가, 본 발명은 20 내지 80 중량%의 내열성 고분자 수지 및 10 내지 70 중량%의 판상형 열전도성 필터를 용융혼합하는 단계 (단계 A);
- [0054] 상기 단계 A에서 혼합된 혼합물에 10 내지 70 중량%의 섬유형 열전도성 필터를 용융혼합하는 단계 (단계 B); 및
- [0055] 상기 단계 B에서 혼합된 혼합물을 사출성형하는 단계 (단계 C); 를 포함하는 고분자 조성물을 포함하는 성형품의 제조방법을 제공한다.
- [0056] 상기 단계 A 및 B는 상기 고분자 조성물 제조방법의 단계 1 및 단계 2와 동일하여 설명을 생략한다. 상기 단계 B에서 제조된 고분자 조성물을 상기 단계 C에 기재된 바와 같이 사출성형함으로써 원하는 성형품을 제조할 수 있다. 본 발명의 제조방법 중 단계 C의 사출성형은 사출 성형기(Injection molding machine)와 같은 장치를 이용하여 공지의 방법으로 수행될 수 있다.
- [0057] 본 발명의 제조방법으로 제조된 고분자 조성물을 포함하는 성형품은 열전도도 및 기계적 강도가 우수하여 전자 기기에서 발생하는 열을 방출시키기 위한 부품에 적용될 수 있으나, 반드시 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0058] 이하, 본 발명의 실시예를 통해 더욱 상세히 설명한다. 단 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0059] <실시예 1> 고분자 조성물의 제조 1
- [0060] 단계 1 : 내열성 고분자 수지와 판상형 열전도성 필터의 혼합
- [0061] 내열성 고분자 수지로 액정고분자(LCP, Ticona사, Vectra A950) 20 ~ 80 중량%, 판상형 열전도성 필터로 그래파이트(Graphite, Showa Denko사, 평균크기:50 내지 200 μm) 10 ~ 70 중량% 를 이축압출기(Collin사, ZK-25 Twin-screw extruder)를 이용하여 용융혼합하였다. 이때, 용융혼합 온도는 300 °C 였다.
- [0062] 단계 2: 섬유형 열전도성 필터의 첨가
- [0063] 상기 단계 1에서 균일하게 혼합된 액정고분자 및 그래파이트의 혼합물에 섬유형 열전도성 필터로 탄소섬유(CF, Toray사, CF-T300, 평균지름 : 7 μm, 평균길이 6 mm, 중형비: 850) 10 ~ 70 중량% 를 첨가하여 단축압출기

(C.W. Brabender사, Single-screw extruder)를 이용하여 용융혼합하였다. 이때, 용융혼합 온도는 300 °C 였다.

- [0064] <실시예 2> 고분자 조성물의 제조 2
- [0065] 상기 실시예 1의 단계 1에서 내열성 고분자 수지로 폴리카보네이트(PC)를 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물을 제조하였다.
- [0066] <실시예 3> 고분자 조성물의 제조 3
- [0067] 상기 실시예 1의 단계 1에서 내열성 고분자 수지로 폴리페닐렌설파이드(PPS)를 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물을 제조하였다.
- [0068] <실시예 4> 고분자 조성물의 제조 4
- [0069] 상기 실시예 1의 단계 1에서 내열성 고분자 수지로 폴리아마이드(PA)를 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물을 제조하였다.
- [0070] <비교예 1> 고분자 조성물의 제조 4
- [0071] 상기 실시예 1에서 열전도성 필러로 그래파이트만을 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물을 제조하였다.
- [0072] <비교예 2> 고분자 조성물의 제조 5
- [0073] 상기 실시예 1에서 열전도성 필러로 탄소섬유만을 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물을 제조하였다.
- [0074] <실험예 1> 고분자 조성물의 열전도도 측정
- [0075] 본 발명의 실시예 1, 비교예 1 및 비교예 2에 의하여 제조된 고분자 조성물의 열전도도를 측정하기 위하여 하기와 같은 실험을 수행하였다.
- [0076] 본 발명의 실시예 1, 비교예 1 및 비교예 2에 의하여 제조된 고분자 조성물에 대하여 Netzsch LFA 477 측정기 (Netzsch 사)를 이용하여 25 °C의 온도에서 ASTM E1461에 따라 열확산도를 측정하였고, MDSC 측정기(TA instrument 사)를 이용하여 ASTM E1952에 따라 비열을 측정하였으며, Gas Pycnometer 측정기(Protech 사)를 이용하여 ASTM D6226에 따라 밀도를 측정하였다.

수학식 1

[0077] 열전도도(κ)=열확산도(α)×비열(Cp)×밀도(ρ)

[0078] 상기 실시예 1, 비교예 1 및 비교예 2에 의하여 제조된 고분자 조성물의 열확산도, 비열 및 밀도를 이용하여 열전도도(κ)를 상기 수학식 1을 이용하여 계산하고 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

표 1

	LCP (중량%)	그라파이트 (중량%)	탄소섬유 (중량%)	열전도도 (W/m.K)
	100	-	-	0.13
비교예 2	40	-	60	5.03
실시예 1	40	10	50	5.28
	40	20	40	7.55
	40	30	30	11.28
	40	40	20	10.02
	40	50	10	8.54
비교예 1	40	60	-	7.32

[0079]

[0080] 표 1은 액정고분자(LCP)내의 열전도성 필러의 양을 고분자 조성물 총 중량에 대하여 60 중량% 로 고정하여, 그라파이트와 탄소섬유의 혼합비율을 조절하여 열전도도를 나타낸 것이다.

[0081] 표 1을 참조하면, 열전도성 필러로 그라파이트만 사용하여 제조된 고분자 조성물의 열전도도(비교예 1)는 탄소섬유만 사용했을 때(비교예 2)보다 약 1.46 배가 높다는 것을 알 수 있다.

[0082] 하지만, 탄소섬유에 비하여 높은 열전도도를 갖는 그라파이트의 일정량을 열전도도가 낮은 탄소섬유로 대체하여 사용하였을 때(실시예 1), 열전도성 필러로 그라파이트만을 사용했을 때(비교예 1)보다 열전도도가 1.1 ~ 1.6배 높아짐을 보였다.

[0083] 또한, 제조된 고분자 조성물 내의 그라파이트와 탄소섬유의 혼합비율이 1 : 1 일 때, 열전도도가 가장 높아짐을 보였다.

[0084] 이를 통하여, 판상형 열전도성 필러와 섬유형 열전도성 필러를 일정 혼합비로 혼합할 경우 열전도도가 향상됨을 알 수 있었으며, 이는, 서로 다른 형태의 열전도성 필러가 일정혼합비로 혼합되어 방향성이 형성된 것에 기인하는 것으로 판단된다.

[0085] 상기 제조된 고분자 조성물 내에서 판상형 열전도성 필러인 그라파이트와 섬유형 열전도성 필러인 탄소섬유는 도 2에 도시된 바와 같이 열의 흐름방향으로 일정한 배열을 가지는 것으로 예상된다.

[0086] <실험예 2> 고분자 조성물의 기계적 물성 측정

[0087] 본 발명의 실시예 1, 비교예 1 및 비교예 2에 의하여 제조된 고분자 조성물의 기계적 물성을 측정하기 위해서 하기와 같은 실험을 수행하였다.

[0088] 본 발명의 실시예 1, 비교예 1 및 비교예 2에 의하여 제조된 고분자 조성물에 대하여 Izod 타입 충격강도 시험기(Instron사, Izod impact tester)를 이용하여 ASTM D256에 따라 충격강도를 측정하였고, UTM 만능시험기(Instron사, Universal Testing Machine)를 이용하여 ASTM D638과 D790에 따라 인장탄성률과 굴곡탄성률을 측정하였으며, 열기계분석기(TA Instruments사, Thermomechanical Analyzer)를 이용하여 ASTM D696에 따라 열팽창계수를 측정하여 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

표 2

	LCP (중량%)	그라파이트 (중량%)	탄소섬유 (중량%)	충격강도 (kgf. cm/cm)	인장탄성률 (GPa)	굴곡탄성률 (GPa)	열팽창계수 (10 ⁻⁶ mm/mm°C)
	100	-	-	32.6	10.6	6.9	8.99
비교예 2	40	-	60	25.97	16.4	19.21	0.35
실시예 1	40	10	50	22.2	17.2	17.66	1.27
	40	20	40	12.4	16.8	17.03	1.28
	40	30	30	4.1	16.7	16.8	1.33
	40	40	20	3.88	16.2	15.6	1.35
	40	50	10	3.64	15.5	13.87	1.40
비교예 1	40	60	-	3.5	14.5	11.2	1.44

[0089]

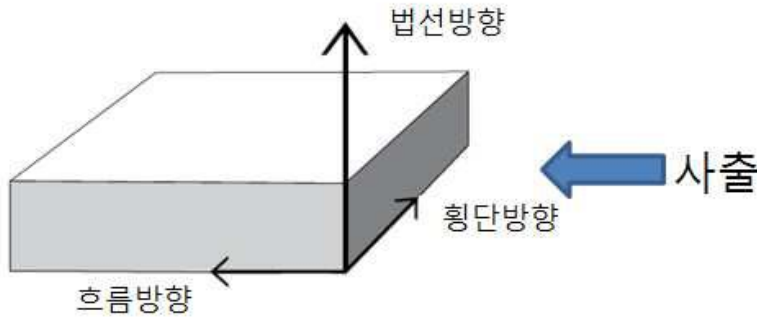
[0090] 표 2는 액정고분자(LCP)내의 열전도성 필러의 양을 고분자 조성물 총 중량에 대하여 60 중량% 로 고정하여, 그라파이트와 탄소섬유의 혼합비율을 조절하여 기계적 물성을 나타낸 것이다.

[0091] 상기 표 2를 참조하면, 열전도성 필러로 탄소섬유만 사용했을 경우, 그라파이트만 사용하였을 때보다 제조된 고분자 조성물의 충격강도, 인장탄성률, 굴곡탄성률 및 열팽창계수를 비롯한 기계적 물성이 우수함을 보였다.

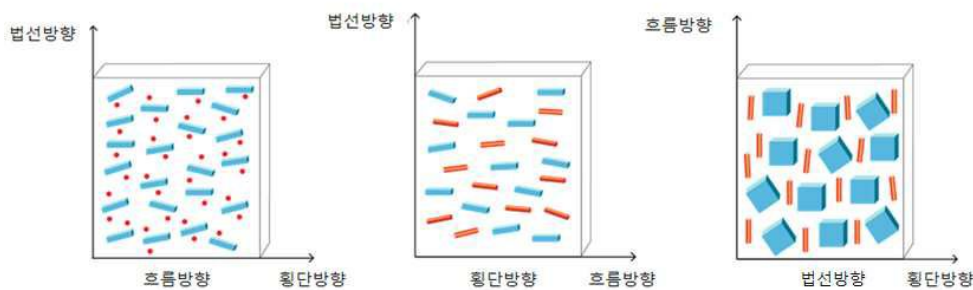
[0092] 이때, 액정고분자 내의 그라파이트의 일정량을 탄소섬유로 대체했을 때, 탄소섬유의 함량이 높아질수록, 그라파이트만 사용했을 때보다 제조된 고분자 조성물의 기계적 물성이 개선됨을 확인할 수 있었다.

도면

도면1



도면2



【심사관 직권보정사항】

【직권보정 1】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 청구항 9

【변경전】

단계 2

【변경후】

단계 B

【직원보정 2】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 청구항 9

【변경전】

단계 1

【변경후】

단계 A