



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2015년01월02일
 (11) 등록번호 10-1478819
 (24) 등록일자 2014년12월26일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
 C08L 101/12 (2006.01) C08K 3/38 (2006.01)
 C08K 7/00 (2006.01) C08J 5/00 (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2013-0037568
 (22) 출원일자 2013년04월05일
 심사청구일자 2013년04월05일
 (65) 공개번호 10-2014-0121161
 (43) 공개일자 2014년10월15일
 (56) 선행기술조사문헌
 KR100706653 B1*
 KR1020090088134 A
 KR1020090108009 A
 KR1020120107403 A
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
 한국화학연구원
 대전광역시 유성구 가정로 141 (장동)
 (72) 발명자
 유영재
 서울 송파구 오금로35길 17, 28동 1303호 (오금동, 현대아파트)
 이성구
 대전 유성구 어은로 57, 110동 1201호 (어은동, 한빛아파트)
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
 이원희

전체 청구항 수 : 총 9 항

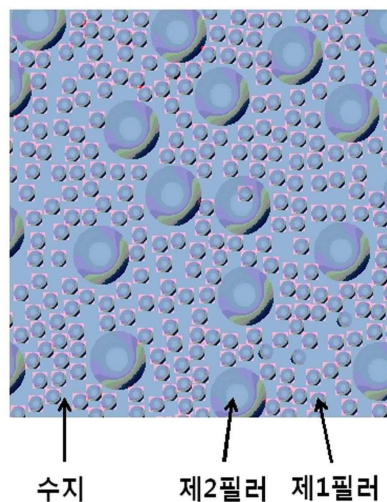
심사관 : 유철중

(54) 발명의 명칭 **전기절연성 및 열전도성 고분자 조성물, 이의 제조방법 및 이를 포함하는 성형품**

(57) 요약

본 발명은 전기절연성 및 열전도성 고분자 조성물, 이의 제조방법 및 이를 포함하는 성형품에 관한 것으로, 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 내열성 수지에 서로 동일한 종류이면서 입자의 크기가 상이한 제1필러 및 제2필러를 혼합함으로써, 상대적으로 입자의 크기가 큰 입자들 사이로 입자의 크기가 작은 입자들이 채워져, 필러간의 접촉율을 향상시키고, 서로 근접한 필러에 영향을 주어 일정방향으로 배열되는 방향성을 향상시키므로, 종래의 단일 크기의 필러만을 포함하는 고분자 조성물보다 적은 함량을 사용하여도 고분자 조성물의 열전도성이 현저하게 증가하는 효과가 있다. 또한, 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 상용화된 필러를 사용하고, 제조방법이 간단하며 제조단가가 낮으므로 대량생산화할 수 있어, 전자부품산업, 반도체 산업 등에 사용되는 방열판, 방열시트 등의 제조에 유용할 수 있다.

대표도 - 도2



(72) 발명자

원종찬

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

이황래

전북 군산시 경춘안1길 32, 다동 207호 (경암동, 신화연립주택)

하성민

대전 서구 대덕대로 415, 107동 605호 (만년동, 상아아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 K00060054_55509
 부처명 지식경제부
 연구관리전문기관 한국산업기술평가관리원
 연구사업명 부품소재기술개발사업
 연구과제명 고효율화 열방출 나노구조의 정밀제어 기술(4차)
 기여율 1/2
 주관기관 한국화학연구원
 연구기간 2012.06.01 ~ 2013.05.31

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 KK-1302-D0
 부처명 산업기술연구회
 연구관리전문기관 산업기술연구회
 연구사업명 기관고유사업
 연구과제명 모바일산업용 고내열 핵심 화학소재 개발
 기여율 1/2
 주관기관 한국화학연구원
 연구기간 2013.01.01 ~ 2013.12.31

특허청구의 범위

청구항 1

내열성 수지 15-25 중량%; 및
제1필러 및 제2필러 75-85 중량%;를 포함하되,
상기 제1필러 및 제2필러는 보론나이트라이드이고, 입경의 비가 1:21.7 인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서,
상기 내열성 수지는 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리카보네이트(PC), 폴리아마이드(PA), 폴리에테르설폰(PES), 폴리설폰(PSU), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리에스터(Polyester)로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 3

삭제

청구항 4

제1항에 있어서,
상기 제1필러 및 제2필러는 시트(Sheet) 또는 플레이트(plate)형상인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 5

제1항에 있어서,
상기 제1필러 및 제2필러의 중량비는 1-3 : 1로 혼합되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서,
상기 제1필러 및 제2필러 입경은 각각 10-50 μm 및 300-350 μm 인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.

청구항 7

내열성 수지 15-25 중량% 및 제1필러 및 제2필러 75-85 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);
상기 단계 1의 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2);를 포함하는 제1항의 고분자 조성물의 제조방법.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 단계 1의 용융 혼합은 250-350 °C의 온도에서 수행되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.

청구항 9

제1항의 고분자 조성물을 이용한 성형품.

청구항 10

내열성 수지 15-25 중량% 및 제1필러 및 제2필러 75-85 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);

상기 단계 1의 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2); 및

상기 단계 2의 압출물을 사출성형하는 단계(단계 3);를 포함하는 제9항의 성형품의 제조방법.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 전기절연성 및 열전도성 고분자 조성물, 이의 제조방법 및 이를 이용하는 성형품에 관한 것이다.

배경 기술

[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 그라파이트 방열시트를 개발하였다. 상기 그라파이트 방열시트는 그린스타(주)에서 자체 개발한 카본나노튜브 분산기술과 아크릴점착제 제조기술을 활용해 방열효율을 4.546 W/m·K 수준으로 높인 것이 특징이다.

[0007] 특허문헌 1은 백색도, 열전도성 및 압출 성형성이 우수한 폴리아마이드계 수지 조성물 및 그 제조방법에 관한 것으로, 폴리아마이드 수지에 열전도 필러, 충전제 및 폴리아마이드와 상용성이 있고, 중량 평균 분자량이 500,000 내지 5,000,000인 열가소성 수지를 포함하는 백색도, 열전도성 및 압출 성형성이 우수한 폴리아마이드계 수지 조성물을 개시하고 있다. 상기 발명은 열전도성 필러로 보론나이트라이드를 사용하여 높은 백색도와 열전도성을 동시에 획득할 수 있지만, 제조되는 열전도성 고분자의 기계적 강도 및 성형성을 보완하기 위하여 별도의 충전제, 백색안료, 및 주쇄로 사용하는 폴리아마이드 수지와 상용성이 있는 고분자 수지를 사용한다.

[0008] 또한, 특허문헌 2는 내열도, 반사율 및 열전도도가 우수한 수지 조성물 및 제조방법에 관한 것으로, 용융점이 270 °C 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 °C의 이축 압출기에서 압출혼합하는 단계를 통해 펠렛 형태로 제조되어 발광 다이오드 패키징용 소재로 사용 가능한 고분자 조성물을 개시하고 있다. 특허문헌 2의 고분자 조성물의 평균 열전도율은 0.5 W/m·K 이며, 기계적인 물성을 보완하기 위하여 추가적으로 강성 증가제를 사용한다.

[0009] 나아가, 비특허문헌 1은 모양과 크기가 다른 탄소계 필러가 에틸렌초산비닐공중합체의 전기 전도도 등과 관련된 물성에 끼치는 영향에 대한 연구에 관한 것으로, 열전도성 필러로 흑연, 쇼트탄소섬유 및 다중벽 탄소나노튜브를 사용하여 제조된 고분자 조성물을 개시하고 있으며, 상기 고분자 조성물의 열전도도가 높게 나타났음을 보고하고 있다. 그러나, 다중벽 탄소나노튜브 및 쇼트탄소섬유의 경우 고가의 물질로서 상기 열전도성 필러를 사용하여 제조된 열전도성 고분자는 대량생산 및 상용화가 어려운 점이 있다.

[0010] 이에, 본 발명자들은 내열성 수지에 서로 동일한 종류이면서 입자의 크기가 상이한 제1필러 및 제2필러를 혼합함으로써, 상대적으로 입자의 크기가 큰 입자들 사이로 입자의 크기가 작은 입자들이 채워져 필러간의 접촉율이 향상되고, 방향성을 가지게 되어 전기절연성 및 열전도성이 우수한 고분자 조성물을 제조할 수 있음을 알아내고 본 발명을 완성하였다.

선행기술문헌

특허문헌

[0011] (특허문헌 0001) 대한민국 등록특허 제10-0079146호
 (특허문헌 0002) 대한민국 등록특허 제10-0088134호

비특허문헌

[0012] (비특허문헌 0001) Carbon volume 49, issue 4, 2011년, p1349-1361.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0013] 본 발명의 목적은 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 제공하는데 있다.

[0014] 본 발명의 다른 목적은 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물의 제조방법을 제공하는데 있다.

[0015] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 이용하는 성형품을 제공하는데 있다.

[0016] 본 발명의 다른 목적은 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 이용하는 성형품의 제조방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0017] 상기의 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은

[0018] 내열성 수지 10-30 중량%; 및

- [0019] 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%;를 포함하되,
- [0020] 상기 제1필러 및 제2필러는 보론나이트라이드이고, 입경의 비가 1:5-40인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물을 제공한다.
- [0021] 또한, 본 발명은 내열성 수지 10-30 중량% 및 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);
- [0022] 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2);를 포함하는 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.
- [0023] 나아가, 본 발명은 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 이용한 성형품을 제공한다.
- [0024] 또한, 내열성 수지 10-30 중량% 및 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);
- [0025] 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2); 및
- [0026] 상기 압출물을 사출성형하는 단계(단계 3);를 포함하는 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 이용한 성형품의 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

- [0027] 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 내열성 수지에 서로 동일한 종류이면서 입자의 크기가 상이한 제1필러 및 제2필러를 혼합함으로써, 상대적으로 입자의 크기가 큰 입자들 사이로 입자의 크기가 작은 입자들이 채워져, 필러간의 접촉율을 향상시키고, 서로 근접한 필러에 영향을 주어 일정방향으로 배열되는 방향성을 향상시키므로, 종래의 단일 크기의 필러만을 포함하는 고분자 조성물보다 적은 함량을 사용하여도 고분자 조성물의 열전도성이 현저하게 증가하는 효과가 있다. 또한, 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 상용화된 필러를 사용하고, 제조방법이 간단하며 제조단가가 낮으므로 대량생산화할 수 있어, 전자부품산업, 반도체 산업 등에 사용되는 방열판, 방열시트 등의 제조에 유용할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0028] 도 1은 종래의 단일 필러를 포함하는 고분자 조성물을 확대하여 나타낸 모식도이다.
 도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 동일한 종류이면서, 입자의 크기가 서로 상이한 제1필러 및 제2필러를 포함하는 고분자 조성물을 확대하여 나타낸 모식도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0029] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0030] 본 발명은 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물 및 이의 제조방법을 제공한다.
- [0031] 구체적으로, 내열성 수지 10-30 중량%; 및
- [0032] 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%;를 포함하되,
- [0033] 상기 제1필러 및 제2필러는 보론나이트라이드이고, 입경의 비가 1:5-40인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물을 제공한다.
- [0034] 본 발명에 있어서, 상기 내열성 수지는 200 ℃ 이상의 고온에서 기계적 및 전기적 성질을 포함하는 물리적 성질을 유지할 수 있는 고분자 물질이면 특별한 제한 없이 사용할 수 있으나, 액정고분자(LCP), 폴리페닐렌설파이드

(PPS), 폴리카보네이트(PC), 폴리아미드(PA), 폴리에테르설폰(PES), 폴리설폰(PSU), 폴리에테르이미드(PEI), 폴리에스터(Polyester) 등을 사용하는 것이 바람직하고, 액정고분자(LCP)를 사용하는 것이 더욱 바람직하다.

- [0035] 본 발명에서 사용되는 상기 액정고분자(LCP)는 용융시 액정상을 나타내는 고분자로서, 폴리에스터계, 폴리아미드계, 폴리카보네이트계 등을 사용할 수 있으며, 그 중 대표적으로 아로마틱 구조를 포함하는 폴리에스터계 수지를 사용하는 것이 바람직하다. 이들은 내열성, 강성, 안정성 등이 우수하여 전자부품이나 정밀성형 부품 등에 널리 이용되고 있다. 여기서, 상기 액정상이란 고체가 녹아 액체가 되었을 때, 입자의 위치 질서는 없거나 방향 질서는 남아있는 것을 의미한다. 따라서, 액정 고분자를 녹여 액정상을 형성시켜서 흐르는 동안 굳히게 되면, 고분자의 사슬이 일정한 방향으로 배열된 채로 굳어져 탁월한 물리적 성질을 지닌 고체상을 얻을 수 있다.
- [0036] 또한, 본 발명에 있어서, 상기 내열성 수지는 10 내지 30 중량% 으로 포함되는 것이 바람직하고, 15 내지 25 중량% 으로 포함되는 것이 더욱 바람직하다. 상기 범위를 벗어난 상기 내열성 수지의 양이 포함된 전기절연성 및 열전도성 고분자 조성물의 경우에는 상대적으로 열전도성이 떨어지는 문제점이 있다.
- [0037] 나아가, 본 발명에 있어서 상기 제1필러 및 제2필러는 동일하게 보론 나이트라이드, 실리콘 카바이드, 알루미늄 나이트라이드, 알루미늄 옥사이드, 아연 옥사이드, 마그네슘 옥사이드 등의 필러를 사용할 수 있으며, 보론 나이트라이드를 사용하는 것이 바람직하다.
- [0038] 상기 제1필러 및 제2필러는 형상에 따라 접촉 면적이 달라지는 판상형 필러 또는 섬유형 필러를 사용할 수 있으나, 필러간의 접촉율을 향상시킬 수 있고 고분자 조성물 내에서 방향성을 갖는 필러로서, 제조되는 고분자 조성물의 열전도성을 향상시킬 수 있는 것이라면 특별한 제한 없이 사용할 수 있다.
- [0039] 상기 제1필러 및 제2필러는 점접촉을 하는 구형이나 튜브 형태의 필러보다는 선 또는 면접촉을 하는 시트(sheet)나 플레이트(plate) 형상의 필러를 사용하는 것이 고분자 조성물의 열전도성을 향상시키는데 바람직하며, 적용 분야에 따라서는 전기절연성을 띠는 세라믹계 필러를 사용할 수도 있다. 제조되는 고분자 조성물의 열전도성을 향상시킬 수 있는 열전도성 필러라면 이에 제한하지 않는다.
- [0040] 구체적으로는, 외부에서 공급된 열이 고분자 내에서 이동하는 경우, 열저항체인 고분자는 열을 전달할 수 있는 매개체가 없으므로 고분자 내에서 이동하는 열은 대부분 손실된다. 반면, 고분자 내에 전기절연성 및 열전도성 필러가 포함될 경우에는 상기 필러가 외부에서 공급된 열을 전달하는 매개체가 되어 열이 외부로 이동할 수 있게 된다. 따라서, 외부에서 공급된 열이 전기절연성 및 열전도성 필러와 접촉율이 늘어나면 더욱 효과적으로 열전도가 이루어져 외부로 방출할 수 있게 된다. 또한, 외부에서 공급된 열을 일정한 방향으로 전달시키고자 하는 방향성을 고려하기 위해, 예를 들면, Y 축 방향으로 열이 효과적으로 전달되기 위해서는 고분자 내에 포함되어 있는 필러가 Y축 방향으로 정렬되면 일정한 방향성을 가지게 되므로 상기 목적을 달성할 수 있게 된다.
- [0041] 또한, 본 발명에 있어서, 상기 제1필러 및 제2필러는 70 내지 90 중량%으로 포함되는 것이 바람직하고, 75 내지 85 중량%으로 포함되는 것이 더욱 바람직하다.
- [0042] 만약, 상기 필러가 70 중량% 미만으로 포함될 경우에는 고분자 조성물의 열전도성이 현저히 떨어지는 문제점이 있고, 90 중량%를 초과하여 포함되는 경우에는 고분자 조성물의 점도가 지나치게 높아져 성형성이 떨어지는 문제가 있으며, 이로부터 제조되는 성형품의 기계적 강도 또한 현저히 떨어지는 문제가 있다.
- [0043] 나아가, 본 발명에 있어서, 상기 제1필러 및 제2필러는 각각 혼합하여 구성되며, 제1필러 및 제2필러의 입경비가 1:5-40인 것을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0044] 구체적으로, 상기 제1필러의 입경은 10-50 μm 인 것을 사용하는 것이 바람직하며, 상기 제1필러와 제2필러의 입경의 비가 클수록 복합재료의 열전도도가 증가하므로 제2필러의 입경은 300-350 μm 인 것을 사용하는 것이 바람직하나, 동일한 종류의 필러이면서 서로 입자의 크기가 상이한 전기절연성 및 열전도성을 갖는 필러라면 이에 제한하지 않는다.

- [0045] 만약, 제1필러의 입경이 10 μm 미만일 경우에는 성형시 필러를 압출 성형기에 주입할 때 비산하여 가공이 어려워지는 문제가 있고, 복합재료에서 필러가 작을수록 표면적이 증가하여 열이 이동하는 통로가 증가할 수 있지만, 오히려 열 저항 접합이 증가하게 되어 포논(phonon)의 산란이 더욱 커지므로 복합재료의 실질적인 열전도도는 작아진다. 또한, 제1필러의 입경이 50 μm 를 초과할 경우에는 제2필러간의 공극을 충분히 채울 수 없어서 필러 간의 접촉이 잘 이루어지지 않는 문제가 있다. 나아가, 제2필러의 입경이 350 μm 를 초과할 경우에는 필러의 최대충진율이 낮아지는 문제가 있다.
- [0046] 또한, 본 발명에 있어서, 상기 제1필러 및 제2필러는 각각 혼합하여 구성되며, 제1필러 및 제2필러의 중량비는 1-3:1로 혼합하여 구성하는 것이 바람직하다. 만약, 제1필러 및 제2필러의 중량비가 1:1 미만인 경우에는 제1필러가 제2필러 사이의 공간을 충분히 채우기가 어렵고, 제1필러 및 제2필러의 중량비가 3:1 초과인 경우에는 제2필러가 충분히 접촉하기 어려워 열전도도 향상이 크지 않은 문제가 있다.
- [0047] 본 발명에서는 서로 입자의 크기가 다른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 필러를 혼합하여 사용함으로써, 고분자 내에서 입자의 크기가 큰 필러들 사이로 입자의 크기가 작은 필러들이 채워져 필러간의 접촉율을 향상시키고, 서로 근접한 시트 또는 플레이트 필러에 영향을 주어 일정방향으로 배열되는 방향성을 향상시키므로 고분자 조성물의 전기절연성 및 열전도성이 현저하게 증가한다.
- [0048] 또한, 본 발명은 내열성 수지 10-30 중량% 및 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);
- [0049] 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2);를 포함하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.
- [0050] 이하, 본 발명에 따른 상기 전기 절연성 및 열전도성 고분자 조성물의 제조방법을 단계별로 상세히 설명한다.
- [0051] 본 발명에 따른 조성물의 제조방법에 있어서, 먼저 상기 단계 1은 내열성 수지 10-30 중량% 및 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%를 용융 혼합하는 단계이다.
- [0052] 상기 단계 1에서, 내열성 수지와 제1필러 및 제2필러가 균일하게 혼합된다. 또한, 상기 단계 1에서 상기 내열성 수지와 제1필러 및 제2필러의 용융 혼합과정은 250 내지 350 $^{\circ}\text{C}$ 에서 수행하는 것이 바람직하나, 상기의 온도 범위에 반드시 한정되는 것은 아니다. 상기 내열성 수지와 제1필러 및 제2필러를 250 $^{\circ}\text{C}$ 미만에서 용융 혼합하는 경우에는 균일하게 이루어지지 않는 문제점이 있고, 350 $^{\circ}\text{C}$ 를 초과하여 용융 혼합하는 경우에는 내열성 수지의 열분해가 일어남에 따라 내열성 수지가 갖는 물성이 저하되는 문제가 있으나, 사용하는 수지 및 필러의 종류에 따라 당업자가 적절히 선택할 수 있다.
- [0053] 상기 단계 2는 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계이다.
- [0054] 상기 단계 2에서, 상기 내열성 수지와 제1필러 및 제2필러의 열간압출은 이축압출기(twin-screw extruder) 등과 같은 장치를 이용하여 공지의 방법에 따라 수행할 수 있다.
- [0055] 따라서, 상기 내열성 수지와 제1필러 및 제2필러를 포함하는 고분자 조성물의 제조방법은 용융 혼합 및 열간압출의 방법으로 수행하므로 간단하며, 용매를 전혀 사용하지 않기 때문에 환경친화적이고 단순한 제조방법이므로 생산성을 향상시킬 수 있다.
- [0056] 나아가, 본 발명은 내열성 수지 10-30 중량% 및 제1필러 및 제2필러 70-90 중량%를 용융 혼합하는 단계(단계 1);
- [0057] 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2); 및
- [0058] 상기 압출물을 사출성형하는 단계(단계 3)를 포함하는 상기 전기절연성 및 열전도성 고분자 조성물을 이용하는

성형품의 제조방법을 제공한다.

[0059] 구체적으로는, 상술한 고분자 조성물의 제조방법과 동일하게 상기 단계 1 및 단계 2를 수행하여 제조되는 전기 절연성 및 열전도성을 갖는 고분자조성물을 사출성형하는 단계 3을 수행함으로써 원하는 성형품을 제조할 수 있다. 단계 3에서 사출성형은 사출성형기(Injection molding machine) 등과 같은 장치를 이용하여 공지된 방법으로 수행될 수 있다.

[0060] 또한, 본 발명은 상기 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물을 이용한 성형품을 제공한다.

[0061] 본 발명에 따른 성형품은, 동일한 종류이면서 서로 크기가 상이한 제1필러 및 제2필러를 혼합하여 사용함에 따라 열전도도가 현저히 향상하므로, 전자부품산업, 반도체 산업 등에 사용되는 방열판, 방열시트 등의 제조에 유용할 수 있다.

[0062] 상술한 바와 같이, 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 내열성 수지에 서로 동일한 종류이면서 입자의 크기가 상이한 제1필러 및 제2필러를 혼합함으로써, 상대적으로 입자의 크기가 큰 입자들 사이로 입자의 크기가 작은 입자들이 채워져, 필러간의 접촉율을 향상시키고, 서로 근접한 필러에 영향을 주어 일정방향으로 배열되는 방향성을 향상시키므로, 종래의 단일 크기의 필러만을 포함하는 고분자 조성물보다 적은 함량을 사용하여도 고분자 조성물의 열전도성이 현저하게 증가하는 효과가 있다. 또한, 본 발명에 따른 전기절연성 및 열전도성을 갖는 고분자 조성물은 상용화된 필러를 사용하고, 제조방법이 간단하며 제조단가가 낮으므로 대량생산화할 수 있어, 전자부품산업, 반도체 산업 등에 사용되는 방열판, 방열시트 등의 제조에 유용할 수 있다.

[0063] 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.

[0064] <실시예 1> 고분자 조성물의 제조 1

[0065] 내열성 수지로써 액정고분자(LCP, Ticona사, Vectra A950) 20 중량%, 제1필러 및 제2필러로써 보론나이트라이드(BN (Boron nitride), Momentive사) 80 중량% (제1필러의 평균 입경은 15 μm 이고, 제2필러의 평균 입경은 325 μm 인 필러를 중량비 2:1로 혼합)를 용융 혼합하였다. 다음으로 상기의 용융 혼합물을 이축압출기(Collin사, ZK-25 Twin-screw extruder)를 이용하여 열간압출함으로써 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다. 이때, 용융 혼합 온도는 300 $^{\circ}\text{C}$ 이었다.

[0066] <비교예 1> 고분자 조성물의 제조 2

[0067] 40 중량%의 내열성 수지 및 60 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 15 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[0068] <비교예 2> 고분자 조성물의 제조 3

[0069] 60 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 15 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

- [0070] <비교예 3> 고분자 조성물의 제조 4
- [0071] 80 중량%의 내열성 수지 및 20 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 15 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0072] <실시예 2> 고분자 조성물의 제조 5
- [0073] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 45 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0074] <비교예 4> 고분자 조성물의 제조 6
- [0075] 40 중량%의 내열성 수지 및 60 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 45 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0076] <비교예 5> 고분자 조성물의 제조 7
- [0077] 60 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 45 μm 와 제2필러 평균 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0078] <비교예 6> 고분자 조성물의 제조 8
- [0079] 80 중량%의 내열성 수지 및 20 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 평균 입경 45 μm 와 제2필러 입경 325 μm 를 중량비 2:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0080] <비교예 7> 고분자 조성물의 제조 9
- [0081] 내열성 수지로 액정고분자(LCP, Ticona사, Vectra A950) 20 중량%, 필러로 평균 입경 크기 15 μm 의 보론나이트라이드(BN (Boron nitride), Momentive사)를 총 80 중량%를 혼합하여서 이축압출기(Collin사, ZK-25 Twin-screw extruder)를 이용하여 압출함으로써 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다. 이때, 압출 온도는 300 $^{\circ}\text{C}$ 였다.
- [0082] <비교예 8> 고분자 조성물의 제조 10
- [0083] 40 중량%의 내열성 수지 및 60 중량%의 필러(입경 15 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0084] <비교예 9> 고분자 조성물의 제조 11
- [0085] 60 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 전기절연성 및 열전도성 필러(입경 15 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0086] <비교예 10> 고분자 조성물의 제조 12

- [0087] 80 중량%의 내열성 수지 및 20 중량%의 필러(입경 15 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0088] <비교예 11> 고분자 조성물의 제조 13
- [0089] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 필러(입경 45 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0090] <비교예 12> 고분자 조성물의 제조 14
- [0091] 40 중량%의 내열성 수지 및 60 중량%의 필러(입경 45 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0092] <비교예 13> 고분자 조성물의 제조 15
- [0093] 60 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 필러(입경 45 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0094] <비교예 14> 고분자 조성물의 제조 16
- [0095] 80 중량%의 내열성 수지 및 20 중량%의 필러(입경 45 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0096] <비교예 15> 고분자 조성물의 제조 17
- [0097] 20 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 필러(입경 325 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0098] <비교예 16> 고분자 조성물의 제조 18
- [0099] 40 중량%의 내열성 수지 및 60 중량%의 필러(입경 325 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0100] <비교예 17> 고분자 조성물의 제조 19
- [0101] 60 중량%의 내열성 수지 및 40 중량%의 필러(입경 325 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0102] <비교예 18> 고분자 조성물의 제조 20
- [0103] 80 중량%의 내열성 수지 및 20 중량%의 필러(입경 325 μm)를 사용한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0104] <비교예 19> 고분자 조성물의 제조 21
- [0105] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 입경 15 μm 와 제2필러 입경 325 μm 를 중량비 0.5:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

- [0106] **<비교예 20> 고분자 조성물의 제조 22**
- [0107] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 입경 45 μm 와 제2필러 입경 325 μm 를 중량비 0.5:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0108] **<비교예 21> 고분자 조성물의 제조 23**
- [0109] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 입경 15 μm 와 제2필러 입경 325 μm 를 중량비 3.5:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0110] **<비교예 22> 고분자 조성물의 제조 24**
- [0111] 20 중량%의 내열성 수지 및 80 중량%의 제1필러 및 제2필러(제1필러 입경 45 μm 와 제2필러 입경 325 μm 를 중량비 3.5:1로 혼합)를 사용하는 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.
- [0112] 상기 실시예 1-2 및 비교예 1-22에 의하여 제조된 고분자 조성물의 각 성분 조성을 하기 표 1에 정리하였다.
- [0113] **<실험예 1> 내열성 수지 및 필러의 조성비 및 제1필러 및 제2필러의 입자 크기에 따른 열전도도 평가에 따른 열전도도 평가**
- [0114] 본 발명의 상기 실시예 1-2 및 비교예 1-6에 의하여 제조된 고분자 조성물을 내열성 수지 및 필러의 조성비에 따른 열전도도를 평가하기 위하여 다음과 같이 실험하였다.
- [0115] 구체적으로, 본 발명의 상기 실시예 1-2 및 비교예 1-6에 의하여 제조된 고분자 조성물에 대하여 열전도도 측정기(Netzsch LFA 447, Netzsch 사)를 이용하여 25 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 측정기준(ASTM E1461)에 따라 열확산도를 측정하였고, 시차주사열량계(MDSC, TA instrument 사)를 이용하여 측정기준(ASTM E1952)에 따라 비열을 측정하였으며, 가스밀도측정기(Accupyc 1330, Protech Korea 사)를 이용하여 측정기준(ASTM D6226)에 따라 밀도를 측정하였다.
- [0116] 상기 실시예 1-2 및 비교예 1-6에 의하여 제조된 고분자 조성물을 상기의 방법으로 측정한 열확산도, 비열 및 밀도에 대한 값을 하기 수학적 식 1을 이용하여 열전도도를 계산하고 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.
- [0117] [수학적 식 1]
- [0118] 열전도도(κ) = 열확산도(α) \times 비열(C_p) \times 밀도(ρ)
- [0119] 하기 표 1에 나타난 바와 같이, 내열성 수지 20 중량% 및 제1필러 및 제2필러를 80 중량%로 사용한 실시예 1-2의 열전도도가 비교예 1-6의 열전도도보다 현저하게 우수하다는 것을 알 수 있으며, 내열성 수지의 조성비가 감소하고 제1필러 및 제2필러의 조성비가 증가할수록 열전도도가 증가한다는 것을 알 수 있다.
- [0120] 또한, 본 발명에 다른 실시예들 사이에서도 제1필러와 제 2필러의 입경비의 차이가 클수록 열전도도가 증가한다는 것을 알 수 있다.
- [0121] 따라서, 상기와 같은 실험 결과로, 내열성 수지 20 중량% 및 제1필러 및 제2필러를 80 중량%의 조성비로 이루어 지되, 제1필러 및 제2필러의 입경 차이가 클수록 고분자 조성물이 열전도도가 우수하다는 것을 알 수 있다.

[0122] <실험예 2> 단일 필터를 사용할 경우의 열전도도 평가

[0123] 본 발명에 따른 실시예 1-2와 같이 동일한 종류이면서 서로 크기가 상이한 제1필터 및 제2필터를 사용하는 것이, 단일 필터를 사용하는 것(비교예 7-18)보다 열전도도가 얼마나 향상되는지 알아보기 위하여 다음과 같이 실험하였다.

[0124] 구체적으로, 실시예 1-2 및 비교예 7-18에서 제조한 고분자 조성물의 열전도도를 상기 실험예 1과 동일한 방법으로 측정하였고, 이를 하기 표 1에 나타내었다.

[0125] 하기 표 1에 나타난 바와 같이, 동일한 종류이면서 입자 크기의 차이가 있는 제1필터 및 제2필터를 사용하여 제조된 실시예 1-2의 고분자 조성물의 열전도도가 단일 필터를 사용하여 제조된 상기 비교예 7, 11, 및 15의 고분자 조성물의 열전도도보다 우수하다는 것을 알 수 있었다.

[0126] 이러한 결과는 단일 필터를 사용하여 제조된 고분자 조성물보다 동일한 종류의 필터이면서 입자 크기의 차이가 큰 제1필터 및 제2필터를 혼합하여 제조된 고분자 조성물의 열전도도가 현저하게 향상됨을 알 수 있으며, 이는 도 2에 나타난 바와 같이, 입자의 크기가 큰 필터와 필터 사이의 공간에 입자의 크기가 작은 필터가 삽입되어 필터간의 접촉율을 향상시키고, 서로 근접한 필터에 영향을 주어 일정방향으로 배열되는 방향성을 향상시키므로 이를 포함하는 고분자 조성물의 전기절연성 및 열전도성이 현저하게 증가하는 효과에 기인하는 것으로 사료된다.

표 1

[0127]

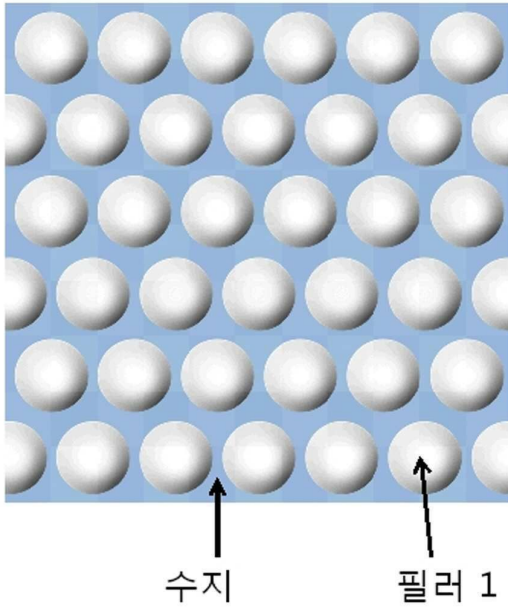
	제1필터 입경(μm)	제2필터입 경(μm)	제1 및 제2 필터 비	내열성 수 지 (중량%)	제1 및 제2 필터 (중량%)	열확산도 (mm ² /s)	밀도 (g/cm ³)	비열 (J/g·K)	열전도도 (W/m·K)
실시예1	15	325	2:1	20	80	6.43	2.06	0.77	10.22
실시예1	45	325	2:1	20	80	4.96	2.03	0.72	7.29
비교예1	15	325	2:1	40	60	2.37	1.82	0.88	3.82
비교예2	15	325	2:1	60	40	1.68	1.65	0.95	2.66
비교예3	15	325	2:1	80	20	1.08	1.54	0.99	1.68
비교예4	45	325	2:1	40	60	2.04	1.82	0.93	3.44
비교예5	45	325	2:1	60	40	1.43	1.65	1.00	2.36
비교예6	45	325	2:1	80	20	0.98	1.52	1.03	1.54
비교예7	15		-	20	80	2.30	1.96	0.81	3.62
비교예8	15		-	40	60	1.87	1.72	0.98	3.14
비교예9	15		-	60	40	1.36	1.61	0.99	2.17
비교예10	15		-	80	20	1.02	1.50	1.03	1.55
비교예11	45		-	20	80	2.91	2.04	0.81	4.82
비교예12	45		-	40	60	1.96	1.72	0.94	3.16
비교예13	45		-	60	40	1.41	1.60	0.99	2.24
비교예14	45		-	80	20	0.99	1.51	1.07	1.60
비교예15	325		-	20	80	3.78	2.05	0.85	6.58
비교예16	325		-	40	60	2.01	1.73	0.96	3.35
비교예17	325		-	60	40	1.48	1.60	1.01	2.33
비교예18	325		-	80	20	0.98	1.53	1.08	1.62

[0128]

상기 실험예 1-2에서 살펴보듯이, 본 발명에 따른 고분자 조성물은 종래의 단일필터를 사용하는 경우에 비하여 동일한 종류이면서 서로 입경이 상이한 제1필터 및 제2필터를 혼합하여 사용함에 따라서 열전도도가 현저히 향상되는 것을 알 수 있었다. 나아가, “내열성 수지”와 “제1필터+제2필터”의 조성비, “제1필터” 및 “제2필터” 각각의 입자크기에 대한 최적의 범위를 제안함으로써, 고분자 조성물의 열전도도가 현저히 향상되는 것을 알 수 있었다.

도면

도면1



도면2

