



(51) 국제특허분류:

C08K 9/04 (2006.01)

C08K 3/04 (2006.01)

C08J 3/22 (2006.01)

C08L 75/04 (2006.01)

C08L 23/16 (2006.01)

C08L 23/26 (2006.01)

C08L 21/00 (2006.01)

H05K 7/20 (2006.01)

B32B 27/20 (2006.01)

(21) 국제출원번호:

PCT/KR2018/004607

(22) 국제출원일:

2018 년 4 월 20 일 (20.04.2018)

(25) 출원언어:

한국어

(26) 공개언어:

한국어

(30) 우선권정보:

10-2017-0051169 2017 년 4 월 20 일 (20.04.2017) KR

10-2017-0051164 2017 년 4 월 20 일 (20.04.2017) KR

10-2017-0051154 2017 년 4 월 20 일 (20.04.2017) KR

(71) 출원인: 주식회사 아모그린텍 (AMOGREENTECH CO., LTD.) [KR/KR]; 10014 경기도 김포시 통진읍 김포대로1950번길 91, Gyeonggi-do (KR).

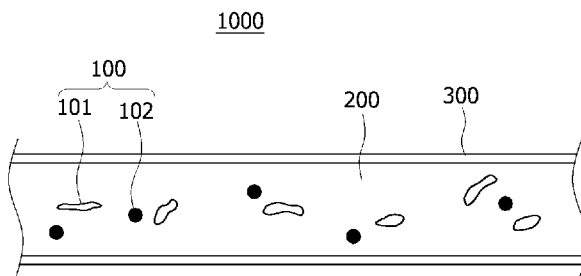
(72) 발명자: 최승진 (CHOI, Seung Jin); 04134 서울시 마포구 마포대로11나길 11 202호 (염리동, 성신뉴타운), Seoul (KR).

(74) 대리인: 특허법인 이룸리온 (ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM); 06575 서울시 서초구 사평대로 108, 3층 (반포동), Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,

(54) Title: GRAPHITE COMPOSITION, MASTERBATCH COMPRISING SAME, AND GRAPHITE COMPOSITE MATERIAL EMBODIED THEREBY

(54) 발명의 명칭: 그래파이트 조성물, 이를 포함하는 마스터배치 및 이를 통해 구현된 그래파이트 복합재



(57) Abstract: A graphite composition is provided. A graphite composition according to one embodiment of the present invention comprises: a graphite composite in which nanoparticles having a catecholamine layer on the surface thereof are fixed on graphite; and graphite of at least one of graphite flakes, spherical graphite, and expanded graphite. According to this, since the graphite composition has a high dispersibility in a substrate of a different material, a composite material thus realized exhibits a uniform heat dissipation performance and can prevent mechanical strength from deteriorating at a specific position. In addition, since the compatibility with the substrate of a different material is excellent and thus the interface property with the substrate is excellent, the realized composite material can exhibit a further improved heat dissipation performance and mechanical strength. Furthermore, it is very easy to form shapes during injection/extrusion molding in combination with a substrate, and molding into complicated shapes is also possible.

(57) 요약서: 그래파이트 조성물이 제공된다. 본 발명의 일 실시예에 따른 그래파이트 조성물은 표면에 카테콜아민층이 구비된 나노입자가 그래파이트 상에 고정된 그래파이트 복합체, 및 그래파이트 플레이크, 구형 그래파이트 및 팽창 그래파이트 중 적어도 어느 하나의 그래파이트를 포함한다. 이에 의하면, 그래파이트 조성물이 이종재질인 기재내 높은 분산성을 가짐에 따라서 이로 구현된 복합체가 균일한 방열성능을 발현하고, 특정 위치에서의 기계적 강도 저하를 방지할 수 있다. 또한, 이종재질인 기재와의 상용성이 우수하여 기재와의 계면특성이 뛰어난에 따라서 구현된 복합체가 더욱 향상된 방열성능 및 기계적 강도를 발현할 수 있다. 나아가 기재와 복합되어 사출/압출 등을 통해 성형 시 성형이 매우 용이하며, 복잡한 형상으로의 성형도 가능하다.

SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR,
TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역
내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE,
LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유
럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI,
FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK,
MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

- 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))
- 청구범위 보정 기한 만료 전의 공개이며, 보정서를 접수
하는 경우 그에 관하여 별도 공개함 (규칙 48.2(h))

명세서

발명의 명칭: 그라파이트 조성물, 이를 포함하는 마스터배치 및 이를 통해 구현된 그라파이트 복합재

기술분야

- [1] 본 발명은 그라파이트 조성물에 관한 것이며, 더욱 상세하게는 경량성 및 방열성능이 이 매우 우수하면서도 다양한 형상으로의 사출이 용이하고, 사출물의 기계적 강도 및 내구성이 뛰어난 방열부재를 구현할 수 있게 하는 그라파이트 조성물, 이를 포함하는 마스터배치 및 이를 통해 구현된 그라파이트 복합재에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 전자부품, 전등, 변환기 하우징 및 기타 원하지 않는 열을 발생시키는 장치에 있어서의 열 축적은 작업 수명을 매우 제한할 수 있고 작동 효율을 감소시킬 수 있다. 우수한 열 전도체인 금속은 통상적으로 히트싱크(heat sink) 및 열 교환기와 같은 열 관리 장치용으로 사용되어왔다. 그러나, 상기 금속 부분은 무게가 무겁고 생산 비용이 높은 문제가 있다.
- [3] 이에 최근에는 사출 성형이나 압출 가능한 고분자 수지를 이용하여 제조되는 방열부재가 제안되고 있으며, 고분자 수지 자체의 재질적 특성으로 인한 경량성, 저렴한 단가 등의 이점으로 인하여 많은 연구가 계속되고 있다.
- [4] 상기 방열부재는 목적하는 방열성을 발현하기 위해 방열필러를 구비하게 되는데, 상기 방열필러는 재질상 낮은 열전도율을 갖는 고분자수지와는 이종일 수밖에 없고, 이에 이종의 재료간 상용성에서 문제가 발생하고 있다. 일례로, 이상적으로는 고분자수지에 방열필러가 균일하게 분산되는 것이 방열성능에서 유리할 수 있으나, 실제로는 방열필러가 고분자수지 특정 위치에 밀집되어서 분포되기 더 쉽고, 이 경우 방열성능이 현저히 저하되며, 방열필러가 밀집된 특정위치에서의 크랙이나 절단이 빈번하여 기계적 강도가 현저히 저하될 수 있는 문제가 있다. 또한, 방열부재 내 방열필러의 함량을 과도하게 높일 경우 제조된 방열부재는 기계적 강도가 현저히 낮아지고, 성형도 어려워짐에 따라서 방열부재내 구비시킬 수 있는 방열필러 함량이 제한되는 문제가 있다.
- [5] 이에 따라서 경량성을 담보하면서도 목적하는 수준으로 방열성능을 충분히 발현하고, 기계적 강도 및 내구성이 우수하고, 사출성형 용이성 뛰어난 방열부재를 구현할 수 있도록 하는 방열필러 조성물에 대한 개발이 시급한 실정이다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [6] 본 발명은 상기와 같은 점을 감안하여 안출한 것으로, 본 발명은 이종재질인 기재내 분산성이 우수하여 균일한 방열성능을 발현하고, 특정 위치에서의

기계적 강도 저하를 방지할 수 있는 그래파이트 조성물을 제공하는데 목적이 있다.

- [7] 또한, 본 발명은 이종재질인 기재와의 상용성이 우수함에 따라서 기재와의 계면특성이 우수해 더욱 향상된 방열성능 및 기계적 강도를 발현할 수 있고, 사출/압출 등을 통해 성형시에도 성형용이성이 향상되고, 복잡한 형상으로서의 성형이 가능하도록 하는 그래파이트 조성물을 제공하는데 다른 목적이 있다.
- [8] 나아가, 본 발명은 본 발명에 따른 그래파이트 조성물을 통해 용이하게 복합재를 제조할 수 있는 그래파이트 복합재 제조용 마스터배치를 제공하는데 또 다른 목적이 있다.
- [9] 더불어, 본 발명은 뛰어난 방열성능을 발현하는 동시에 우수한 기계적 강도가 담보되고, 경량성이 우수하며, 경제성이 뛰어나고, 복잡한 형상으로도 구현되는 그래파이트 복합재를 제공하는데 또 다른 목적이 있다.
- [10] 또한, 본 발명은 우수한 방열성능을 발현하는 동시에 기계적 강도가 담보되고, 내구성이 우수하여 장시간 방열성능을 발현할 수 있어서 발열원의 지지체, 외부하우징 등으로 응용이 가능한 방열복합재 및 이를 이용한 전기전자 부품을 제공하는데 또 다른 목적이 있다.

과제 해결 수단

- [11] 상술한 과제를 해결하기 위하여 본 발명의 제1구현예는 표면에 나노입자가 그래파이트 상에 고정된 그래파이트 복합체; 및 그래파이트 플레이크, 구형 그래파이트 및 팽창 그래파이트 중 적어도 어느 하나의 그래파이트;를 포함하는 그래파이트 조성물을 제공한다.
- [12] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 그래파이트 복합체는 적어도 나노입자 상에 카테콜아민층이 더 구비될 수 있다.
- [13] 또한, 상기 그래파이트 복합체와 상기 그래파이트는 1: 1 ~ 25 중량비, 보다 바람직하게는 1: 15 중량비로 구비될 수 있다.
- [14] 또한, 상기 그래파이트 복합체는 적어도 상기 카테콜아민층에 피복된 고분자층을 더 포함될 수 있다.
- [15] 또한, 상기 그래파이트 복합체는 평균입경이 10 ~ 900 μm 일 수 있다. 또한, 상기 그래파이트 복합체는 평균입경이 50 ~ 600 μm 일 수 있다. 또한, 상기 그래파이트 플레이크는 평균입경이 10 μm ~ 1,000 μm 이며, 상기 팽창흑연은 평균입경이 50 μm ~ 1,000 μm 이고, 상기 구형 그래파이트는 평균입경이 10 μm ~ 100 μm 일 수 있다.
- [16] 또한, 상기 그래파이트는 팽창흑연일 수 있다. 또는, 상기 그래파이트는 그래파이트 플레이크와 팽창흑연을 포함하며, 상기 팽창흑연과 그래파이트 플레이크는 1: 1 ~ 20 중량비, 보다 바람직하게는 1: 1 ~ 13중량비로 포함될 수 있다.
- [17] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 그래파이트 조성물 및 열가소성 고분자화합물을 포함하는 그래파이트 복합재 제조용 마스터배치를 제공한다.

- [18] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 그라파이트 조성물은 마스터배치 전체중량 중 20 ~ 80 중량%로 구비될 수 있다.
- [19] 또한, 상기 열가소성 고분자화합물은 상기 열가소성 고분자 화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 혼성 중합체(ABS), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리아미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머를 포함할 수 있다.
- [20] 또한, 본 발명은 열가소성 고분자화합물을 포함하여 성형된 고분자매트릭스 및 상기 고분자매트릭스에 분산된 본 발명에 따른 그라파이트 조성물을 포함하는 방열필러를 구비하는 그라파이트 복합재를 제공한다.
- [21] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 탄소섬유, 유리섬유, 탄산칼슘, 탄산마그네슘, 운모, 탈크, 탄화규소, 고령토, 황산칼슘, 황산바륨, 이산화규소, 수산화암모늄, 수산화마그네슘 및 수산화알루미늄으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 강도개선제를 더 포함할 수 있고, 이때, 상기 강도개선제는 그라파이트 조성물 100 중량부에 대해 0.1 ~ 30 중량부로 포함될 수 있다.
- [22] 또한, 열가소성폴리우레탄(TPU) 및 열가소성폴리올레핀(TPO) 중 1 종의 충격개선제를 더 포함할 수 있고, 이때, 상기 충격개선제는 그라파이트 조성물 100 중량부에 대해 0.1 ~ 30 중량부로 포함될 수 있다. 또한, 상기 분산제, 산화방지제, 작업개선제, 커플링제, 난연제, 광안정제, 열안정제 및 UV 흡수제로 이루어진 군에서 선택된 1 종 이상의 첨가제를 더 포함할 수 있다.
- [23] 또한, 상기 고분자매트릭스의 외부면 적어도 일부에는 보호코팅층이 더 구비될 수 있다.
- [24] 또한, 본 발명은 심부와 상기 심부를 둘러싸는 피복부를 형성하도록 열가소성 고분자화합물을 포함하여 성형된 고분자매트릭스, 상기 심부 내부를 포함하여 분산되는 본 발명에 따른 그라파이트 조성물을 포함하는 제1방열필러 및 상기 피복부 내부를 포함하여 분산된 안료를 포함하는 그라파이트 복합재를 제공한다.
- [25] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 피복부는 제2방열필러를 더 포함할 수 있다.
- [26] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 그라파이트 복합재, 및 상기 그라파이트 복합재의 고분자매트릭스와 적어도 하나의 계면을 형성하도록 구비되는 지지부재를 포함하는 방열복합재를 제공한다.
- [27]
- [28] 또한, 상술한 과제를 해결하기 위해 본 발명의 제2구현에는 고분자매트릭스, 상기 고분자매트릭스와 적어도 하나의 계면을 형성하도록 구비되는 금속지지층, 및 상기 고분자매트릭스에 분산되고, 상기 금속지지층과 상기

고분자매트릭스 중 어느 하나 이상과 형성한 계면에서 앵커(anchor)로써 기능하는 나노입자가 그래파이트 표면에 구비된 그래파이트 복합체를 포함하는 방열필러를 구비하는 방열복합체를 제공한다.

- [29] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 금속지지층 및 상기 고분자매트릭스 중 어느 하나 이상과 형성한 계면에서 접합력을 향상시키기 위하여, 상기 그래파이트 복합체는 적어도 나노입자 상에 피복된 카테콜아민층을 더 포함할 수 있다.
- [30] 또한, 상기 그래파이트 복합체는 고분자매트릭스와 형성한 계면에서 접합력을 향상시키기 위하여 적어도 상기 카테콜아민층 상에 피복된 고분자층을 더 포함할 수 있다.
- [31] 또한, 상기 그래파이트 복합체는 평균입경이 $10 \sim 900 \mu\text{m}$ 일 수 있다. 또한, 상기 방열필러는 그래파이트 복합체의 응집을 방지하기 위한 그래파이트 플레이크, 팽창흑연 및 구형 그래파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그래파이트를 더 포함할 수 있다. 이때, 상기 그래파이트 플레이크는 평균입경이 $10 \mu\text{m} \sim 1,000 \mu\text{m}$ 이며, 상기 팽창흑연은 평균입경이 $50 \mu\text{m} \sim 1,000 \mu\text{m}$ 이고, 상기 구형 그래파이트는 평균입경이 $10 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [32] 또한, 상기 방열필러는 그래파이트 플레이크, 팽창흑연 및 구형 그래파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그래파이트를 더 포함하고, 상기 그래파이트 복합체와 상기 그래파이트는 1: 1 ~ 25 중량비, 보다 바람직하게는 1: 15 중량비로 구비될 수 있다. 이때, 상기 그래파이트는 팽창흑연일 수 있다. 또는, 상기 그래파이트는 그래파이트 플레이크와 팽창흑연을 포함하며, 상기 팽창흑연과 그래파이트 플레이크는 1: 1 ~ 20 중량비, 보다 바람직하게는 1: 1 ~ 13 중량비로 포함할 수 있다.
- [33] 또한, 상기 고분자매트릭스는 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리이미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머를 포함할 수 있다.
- [34] 또한, 상기 금속지지층은 알루미늄, 마그네슘, 철, 티타늄, 구리로 이루어진 군에서 선택된 1종의 금속 또는 적어도 1종의 금속이 포함된 합금일 수 있다. 이때, 상기 금속지지층의 두께는 방열복합체 전체 두께 대비 0.5 ~ 90%의 두께일 수 있다.
- [35] 또한, 상기 나노입자는 평균입경이 $5 \sim 65 \text{nm}$ 일 수 있고, 보다 바람직하게는 $10 \sim 50 \text{nm}$ 일 수 있다.
- [36] 또한, 탄소섬유, 유리섬유, 탄산칼슘, 탄산마그네슘, 운모, 탈크, 탄화규소, 고령토, 황산칼슘, 황산바륨, 이산화규소, 수산화암모늄, 수산화마그네슘 및 수산화알루미늄으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 강도개선제를 더

포함할 수 있고, 이때, 상기 강도개선제는 방열필러 100 중량부에 대해 0.5 ~ 200 중량부로 포함될 수 있다. 또한, 천연고무 또는 스티렌 부타디엔고무(styrene butadiene rubber, SBR), 부타디엔고무(butadiene rubber, BR), 클로로프렌 고무(chloroprene rubber, CR), 이소프렌 고무(isoprene rubber, IR), 이소부텐 이소프렌 고무(isobutene isoprene rubber, IIR), 니트릴고무(acrylonitrile-butadiene rubber, NBR), 에틸렌프로필렌고무(ethylene propylene rubber, EPR), 에틸렌프로필렌다이엔 모노머 고무(ethylene propylene diene monomer rubber), 아크릴고무(acrylic rubber), 실리콘고무, 불소고무 및 우레탄고무(urethane rubber)로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 합성고무를 포함하는 충격개선제를 더 포함할 수 있고, 이때, 상기 충격개선제는 방열필러 100 중량부에 대해 0.5 ~ 200 중량부로 포함될 수 있다. 또한, 분산제, 산화방지제, 작업개선제, 커플링제, 난연제, 광안정제, 열안정제 및 UV 흡수제로 이루어진 군에서 선택된 1 종 이상의 첨가제를 더 포함할 수 있다.

[37] 또한, 상기 고분자매트릭스 외부면 적어도 일부에는 보호코팅층이 구비될 수 있고, 보다 바람직하게는 상기 보호코팅층은 방열코팅층일 수 있다.

[38] 또한, 본 발명은 금속지지층 및 고분자매트릭스 중 어느 하나 이상과 형성한 계면에서 앵커(anchor)로써 기능하는 나노입자가 그라파이트 표면에 구비된 그라파이트 복합체를 포함하는 방열필러와 고분자매트릭스를 형성하는 주재수지인 고분자화합물을 구비하는 고분자매트릭스 조성물을 준비하는 단계, 및 상기 그라파이트 조성물을 금속지지층의 적어도 일면상에 구비되도록 성형시키는 단계를 포함하는 방열복합재 제조방법을 제공한다.

[39] 또한, 본 발명은 금속지지층이 고분자매트릭스와 적어도 하나의 계면을 형성하도록 구현된 방열복합재에서 상기 고분자매트릭스에 구비되는 방열복합재용 방열필러에 있어서, 상기 방열필러는 상기 금속지지층과 상기 고분자매트릭스 중 어느 하나 이상과 형성한 계면에서 앵커(anchor)로써 기능하는 나노입자가 그라파이트 표면에 구비된 그라파이트 복합체를 포함하는 방열복합재용 방열필러를 제공한다.

[40] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 방열복합재를 포함하는 전기·전자부품을 제공한다. 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 방열복합재는 전기·전자부품의 방열하우징, 방열지지부재, 방열회로기판, 히트싱크일 수 있다.

발명의 효과

[41] 본 발명에 의하면, 그라파이트 조성물이 이중재질인 기재내 높은 분산성을 가짐에 따라서 이로 구현된 복합재가 균일한 방열성능을 발현하고, 특정 위치에서의 기계적 강도 저하를 방지할 수 있다. 또한, 이중재질인 기재와의 상용성이 우수하여 기재와의 계면특성이 뛰어나므로 따라서 구현된 복합재가 더욱 향상된 방열성능 및 기계적 강도를 발현할 수 있다. 나아가 기재와 복합되어 사출/압출 등을 통해 성형 시 성형이 매우 용이하며, 복잡한

형상으로의 성형도 가능하다. 이에 따라 구현된 복합재는 뛰어난 방열성능을 발현하는 동시에 우수한 기계적 강도가 담보되고, 경량성이 우수하며, 경제성이 뛰어나고, 내구성이 우수함에 따라서 외부의 수분, 열 등의 물리/화학적 자극에도 방열성/기계적 강도의 저하 없이 장시간 방열성능을 발현할 수 있음에 따라서 방열 및 기계적 강도가 요구되는 다양한 기술분야에 널리 응용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[42] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 의한 그라파이트 복합체 도면으로써, 도 1a는 그라파이트 복합체의 사시도, 도 1b는 도 1a의 X-X'경계선에 따른 단면도를 나타낸 도면,

[43] 도 2 내지 도 5는 본 발명의 여러 실시예에 따른 그라파이트 복합체의 단면도,

[44] 도 6 내지 도 9는 지지부재로써 금속지지층의 위치를 달리한 본 발명의 일 실시예에 따른 방열복합체의 단면도, 그리고

[45] 도 10은 도 6의 A 부분에 대한 부분확대도이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[46] 이하, 첨부한 도면을 참고로 하여 본 발명의 실시예에 대하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다. 도면에서 본 발명을 명확하게 설명하기 위해서 설명과 관계없는 부분은 생략하였으며, 명세서 전체를 통하여 동일 또는 유사한 구성요소에 대해서는 동일한 참조부호를 부가한다.

[47] 먼저 본 발명의 제1구현예에 대해 설명한다.

[48] 본 발명의 일 실시예에 의한 그라파이트 조성물은 표면에 나노입자가 그라파이트 상에 고정된 그라파이트 복합체와 그라파이트 플레이크, 구형 그라파이트 및 팽창 그라파이트 중 적어도 어느 하나의 그라파이트를 포함한다.

[49] 도 1a 및 도 1b를 참조하여 설명하면, 상기 그라파이트 복합체(101)는 그라파이트(10) 표면에 결합된 나노입자(20)를 포함하고, 카테콜아민층(30) 및 고분자층(40)을 더 포함할 수 있다.

[50] 상기 그라파이트(10)는 탄소 원자의 6원자 고리가 평면적으로 무한히 연결된 평면형 거대분자가 층을 이루어 포개어진 광물로서, 당업계에서 공지된 종류일 수 있으며, 구체적으로 인상흑연, 고결정질 흑연 및 토상흑연 중 어느 하나의 천연흑연이거나 인조흑연일 수 있다. 상기 그라파이트(10)가 천연흑연일 경우 일례로, 인상흑연을 팽창처리한 팽창흑연일 수 있고, 이를 통해 제조된 그라파이트 복합체와 후술하는 그라파이트가 혼합 사용되었을 때 본 발명의 목적을 달성하기 보다 유리할 수 있다. 상기 인조흑연은 공지된 방법을 통해 제조된 것일 수 있다. 일례로, 폴리아미드와 같은 열경화성 수지를 25 μ m 이하의 필름형상으로 제조한 후 2500 $^{\circ}$ C 이상의 고온에서 흑연화하여 단결정 상태의

그래파이트로 제조하거나, 메탄과 같은 탄화수소를 고온에서 열분해하여 화학증기증착법(CVD)으로 고배향의 그래파이트를 제조할 수도 있다.

- [51] 또한, 상기 그래파이트(10)의 형상은 구상, 판상 또는 침상 등 공지된 형상이거나 비정형의 형상일 수 있으며, 일예로 판상일 수 있다.
- [52] 또한, 상기 그래파이트(10)의 평균입경은 10 ~ 900 μm 일 수 있으며, 보다 바람직하게는 30 ~ 500 μm 일 수 있고, 일예로 300 μm 일 수 있다. 만일 그래파이트(10)의 평균입경이 10 μm 미만으로 작아질 경우 그래파이트 복합체(101)의 제조공정 중 카테콜아민 성분의 수세공정에서 여과필터의 기공을 폐쇄시켜 탈수공정이 어려워질 수 있다. 또한, 상기 그래파이트(10)는 순도가 99% 이상인 고순도의 그래파이트일 수 있으며, 이를 통해 보다 향상된 물성을 발현하기에 유리할 수 있다.
- [53] 다음으로 상술한 그래파이트(10)의 표면에 결합된 나노입자(20)는 그래파이트(10)에 후술하는 카테콜아민층(30)을 더 구비시킬 수 있는 매개체로써 기능한다. 이에 대해 구체적으로 설명하면, 상술한 그래파이트(10)의 표면에는 화학반응을 매개할 수 있는 작용기 등이 거의 구비되지 않음에 따라서 그래파이트(10)의 이종재질 내 분산성을 향상시킬 수 있는 카테콜아민층(30)을 그래파이트(10) 표면에 구비시키기 용이하지 않음에 따라서 카테콜아민을 그래파이트에 처리해도 실제 그래파이트에 남아 있는 카테콜아민의 양은 매우 적은 문제가 있다. 또한, 이를 해결하기 위해 그래파이트 표면에 작용기가 구비되도록 개질처리를 수행해도 개질된 그래파이트의 표면에 구비되는 카테콜아민의 양을 증가시키는 것에는 한계가 있다. 그러나 나노입자가 표면에 구비된 그래파이트의 경우 카테콜아민이 상기 나노입자의 표면에 용이하게 결합됨에 따라서 그래파이트에 카테콜아민을 목적하는 양만큼 도입시킬 수 있는 이점이 있다.
- [54] 또한, 그래파이트 조성물을 이용한 그래파이트 복합체나, 방열복합체에서 상기 그래파이트 복합체(101)의 나노입자(20)는 앵커로써 기능할 수 있다. 즉, 나노입자가 구비되지 않을 경우 그래파이트 외부면과 고분자매트릭스 및/또는 지지부재 간 형성된 계면에서 상용성 부족으로 인한 들뜸 부분이 존재하거나 사용 중 진동, 충격 등에 의해 계면의 들뜸, 고분자매트릭스의 크랙, 박리가 쉽게 발생할 수 있는 우려가 있다.
- [55] 그러나 그래파이트 복합체(101)에 구비된 나노입자(20) 중에서 지지부재에 접하는 나노입자는 그래파이트(10)와 지지부재 간 계면에서 앵커로써 기능하며, 고분자매트릭스와 접하는 나노입자는 그래파이트(10)와 고분자매트릭스 간 계면에서 앵커로써 기능함에 따라서 고분자매트릭스가 지지부재에서 들뜨는 이격현상을 방지할 수 있다. 그래파이트 복합체(101)의 나노입자(20)가 고분자매트릭스에 앵커역할을 하기 때문에 고분자매트릭스와 그래파이트 복합체(101)간 계면의 들뜸 역시 방지될 수 있다.
- [56] 상기 나노입자(20)는 상온에서 고체로 존재하는 금속 또는 비금속 물질일 수

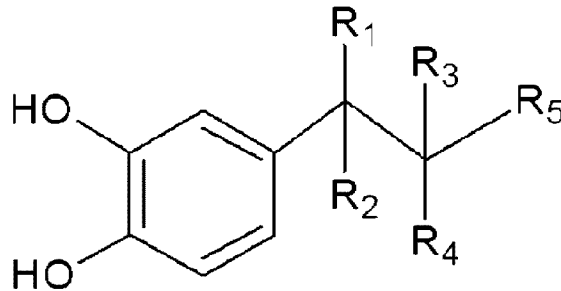
있고, 이에 대한 비제한적이 예로써, 주기율표상의 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 란타넘족, 악티늄족, 전이금속, 전이후금속, 준금속류 등으로부터 선택될 수 있다. 일례로, 상기 나노입자는 Ni, Si, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Cu, Sn, In, Pt, Au, Mg 및 이들의 조합일 수 있고, Cu, Ni 또는 Si인 것이 바람직하다.

- [57] 또한, 상기 나노입자(20)는 평균입경이 5 ~ 100nm, 보다 바람직하게는 5 ~ 65 nm일 수 있고, 더욱 바람직하게는 10 ~ 50nm일 수 있으며, 이를 통해 앵커로써의 기능을 수행하기 적합할 수 있다. 만일 나노입자의 평균입경이 5nm 미만일 경우 지지부재와 고분자매트릭스 간 계면 접합 특성 향상을 위한 앵커로써의 기능이 미미할 수 있다. 또한, 만일 나노입자의 평균입경이 100nm를 초과할 경우 한정된 면적의 그라파이트 표면 상에 구비되는 나노입자 개수가 줄어들어 목적하는 수준으로 계면접합 특성을 발현하기 어려울 수 있다. 또한, 그라파이트 상에 결합된 입자상으로 제조하기 어렵고, 단독의 나노분말로 제조될 우려가 있다. 또한, 그라파이트 상에 형성되는 경우에도 그라파이트 외부면을 넓게 덮음에 따라서 입자상의 형상으로 구현되기 어렵고, 이로 인해 앵커로써 기능이 저하될 수 있다. 나아가 후술하는 것과 같이 카테콜아민층이 도입되는 경우에 그라파이트 복합체 내 로딩되는 카테콜아민층의 양이 증가함에 따라서 그라파이트 복합체 간 응집이 심화되어 고분자매트릭스 내 그라파이트 복합체의 분산성이 저하되고, 균일한 방열특성을 발현하기 어렵고, 그라파이트 복합체가 응집된 부분의 내구성이 현저히 저하될 우려가 있다.
- [58] 또한, 상기 나노입자(20)는 바람직하게는 결정화된 입자상태로, 날개의 그라파이트(10) 전체 표면적에 대해 10% 이상 면적, 보다 바람직하게는 10 ~ 70% 면적을 차지하도록 구비될 수 있다. 또한, 상기 나노입자(20)는 그라파이트 복합체(101) 전체 중량에 대해 3 ~ 50중량%, 보다 바람직하게는 3 ~ 20중량%로 구비될 수 있다.
- [59] 다음으로 상기 카테콜아민층(30)은 적어도 상술한 나노입자(20)의 표면에 구비될 수 있으며, 이를 통해 후술하는 이종재질의 고분자화합물 내에 그라파이트의 우수한 유동성, 분산성 및 그라파이트 복합체와 고분자화합물 간 계면결합 특성을 향상시킬 수 있다. 또한, 상기 카테콜아민층(30)은 그 자체로 환원력을 가짐과 동시에 층 표면의 카테콜작용기에 아민작용기가 Michael 첨가 반응에 의한 공유결합을 형성함으로써, 카테콜아민층을 접착물질로 사용하는 2차 표면개질이 가능하며, 일례로, 보다 더 향상된 고분자화합물 내 분산성을 발현하기 위해 고분자층(40)을 그라파이트에 도입시킬 수 있는 접착물질로써 작용할 수 있다.
- [60] 상기 카테콜아민층(30)을 형성하는 카테콜아민은 벤젠 고리의 오르쏘(ortho)-그룹으로 하이드록시 그룹 (-OH)을 가지고, 파라(para)-그룹으로 다양한 알킬아민을 갖는 단분자를 의미하는 용어으로써, 이러한 구조체의 다양한 파생물에 대한 비제한적인 예로써, 도파민(dopamine), 도파민퀴논(dopamine-quinone), 에피네프린(epinephrine),

알파-메틸도파민(α-methyldopamine), 노르에피네프린(norepinephrine), 알파-메틸도파(α-methyldopa), 드록시도파(droxidopa), 인돌아민(indolamine), 세로토닌(serotonin) 또는 5-하이드록시도파민(5-Hydroxydopamine) 등일 수 있고, 일례로써, 상기 카테콜아민층(30)은 도파민(dopamine)층일 수 있다. 상기 도파민은 카테콜과 아민 작용기를 가지는 분자량 153(Da)의 단분자 물질인데, 일례로써 하기 화학식 1로 표시되는 도파민을 포함하는 염기성 pH 조건(약 pH 8.5)의 수용액에 표면 개질하고자 하는 물질을 넣었다가 일정 시간 뒤에 꺼내면 카테콜의 산화에 의해 물질의 표면에 폴리도파민(polydopamine, pDA) 코팅층이 형성될 수 있다.

[61] [화학식 1]

[62]



[63] 상기 화학식 1에서 R_1 , R_2 , R_3 , R_4 및 R_5 중 적어도 어느 하나는 각각 티올, 1차아민(primary amine), 2차아민(secondary amine), 니트릴(nitrile), 알데하이드(aldehyde), 이미다졸(imidazole), 아자이드(azide), 할로젠화물(halide), 폴리헥사메틸렌 디티오키보네이트(polyhexamethylene dithiocarbonate), 하이드록실(hydroxyl), 카르복실산(carboxylic acid), 카르복실에스터(carboxylic ester) 또는 카르복사미드(carboxamide)로 구성된 군에서 선택된 1종이며, 나머지는 수소일 수 있다.

[64] 또한, 상기 카테콜아민층(30)의 두께는 5 ~ 100nm일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.

[65] 한편, 상기 카테콜아민층(30) 상에는 고분자층(40)이 더 피복될 수 있으며, 상기 고분자층(40)으로 인하여 복합재를 형성하는 고분자화합물과 상용성이 증가함에 따라서 더욱 향상된 유동성, 분산성 및 계면결합 특성을 구현할 수 있다. 상기 고분자층(40)은 열경화성 고분자화합물 또는 열가소성 고분자화합물로 구현된 것일 수 있고, 열경화성 고분자화합물 및 열가소성 고분자화합물의 구체적인 종류는 공지된 것일 수 있다. 이에 대한 비제한적인 예로써, 상기 열경화성 고분자화합물은 에폭시계, 우레탄계, 에스테르계 및 폴리이미드계 수지로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있다. 상기 열가소성 고분자화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리이미드로 이루어진

군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있다. 또는 상기 고분자층은 천연고무 및/또는 합성고무를 포함하는 고무탄성체 및 이의 유사물질일 수도 있다.

- [66] 또한, 상기 고분자층(40)이 더 구비될 경우 고분자층은 두께가 1 ~ 100nm로 형성될 수 있다. 또한, 상기 고분자층(40)은 그래파이트 복합체 전체 중량을 기준으로 0.01 ~ 20 중량% 포함될 수 있다.

[67]

- [68] 상술한 그래파이트 복합체(101)는 그래파이트 표면에 나노입자가 형성된 그래파이트-나노입자 결합체를 제조하는 단계; 및 상기 그래파이트-나노입자 결합체 상에 카테콜아민층을 형성시키는 단계;를 포함하여 제조될 수 있으며, 상기 카테콜아민층을 형성한 후 고분자층을 더 형성시키는 단계를 더 수행하여 제조될 수 있다.

- [69] 본 발명의 일 실시예에 의한 그래파이트 표면에 나노입자가 형성된 그래파이트-나노입자 결합체를 제조하는 단계는 그래파이트 표면 상에 나노입자를 형성시키는 공지의 방법인 경우 제한 없이 채용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적이 예로써, 금속계 나노분말을 제조하는 기존의 기상합성 기술로는 불활성기체응축(Inert Gas Condensation, IGC), 화학기상 응축(Chemical Vapor Condensation, CVC), 금속염 분무건조(Metal Salt Spray-Drying) 등의 방법을 채용할 수 있다. 다만, 이 중 불활성기체응축(IGC) 공정은 고순도의 극미세한 나노금속분말 제조가 가능하나, 큰 에너지를 필요로 하고, 생산속도가 매우 낮아 공업적 응용에 한계가 있으며, 화학기상응축(CVC) 공정은 불활성기체응축(IGC) 공정에 비해 에너지 면이나 생산속도 면에서 다소 개선된 공정이나, 원료물질인 프리커서(precursor)의 가격이 매우 비싸서 비경제적일 수 있다. 또한, 금속염 분무건조공정은 값싼 염을 원료로 사용하므로 경제적이지만 건조단계에서의 오염과 분말의 응집을 피할 수 없고, 유독성 부산물이 발생하므로 환경적인 측면에서 불리하다.

- [70] 이에 바람직하게는 대기압 고주파 열플라즈마를 통해 나노입자를 그래파이트 상에 형성시킬 수 있다. 구체적으로 그래파이트 및 나노입자 형성분말을 혼합하는 단계; 제조된 혼합물에 가스를 주입하는 단계; 고주파 열플라즈마를 통해 나노입자 형성물질을 기화시키는 단계; 및 기화된 나노입자 형성물질을 그래파이트 표면에 결정화시키는 단계;를 통해 수행될 수 있다.

- [71] 먼저, 그래파이트 및 나노입자 형성분말을 혼합하는 단계에서 두 물질 간 혼합비율은 목적에 따라 달리 설계될 수 있으나, 바람직하게는 나노입자를 고밀도로 구비시키기 위하여 그래파이트 100 중량부에 대해 나노입자 형성물질을 3 ~ 100 중량부로 혼합할 수 있다. 이때, 별도의 교반기를 이용하여 혼합할 수 있다.

- [72] 다음으로 혼합된 혼합물에 가스를 주입할 수 있는데, 이때 주입되는 가스는 그 기능에 따라 시스가스, 센트럴가스, 캐리어 가스 등으로 분류될 수 있으며,

이러한 가스에는 아르곤과 같은 불활성 기체, 수소, 질소 또는 이들을 혼합한 기체가 사용될 수 있고, 바람직하게는 아르곤 가스를 사용할 수 있다. 상기 시스 가스는 벽체의 내부 표면에 기화된 나노입자가 부착되는 것을 방지하고 또한 벽면을 초고온의 플라즈마로부터 보호하기 위해 주입되는 것으로서, 30 ~ 80 lpm(liters per minute)의 아르곤 가스를 사용할 수 있다. 또한, 센트럴가스는 고온의 열플라즈마를 생성하기 위하여 주입되는 가스로써, 30 ~ 70 lpm의 아르곤 가스를 사용할 수 있다. 또한, 캐리어 가스는 혼합물을 플라즈마 반응기 내부로 공급하는 역할의 가스로써, 5 ~ 15 lpm의 아르곤 가스를 사용할 수 있다.

- [73] 다음으로 고주파 열플라즈마를 통해 나노입자 형성물질을 기화시킬 수 있다. 상기 열플라즈마(thermal plasma)는 직류 아크나 고주파 유도결합 방전을 이용하는 플라즈마 토치에서 발생시킨 전자, 이온, 원자와 분자로 구성된 이온화 기체로써, 수천에서 수만 K에 이르는 초고온과 높은 활성을 가진 고속제트이다. 이에 따라 고온의 플라즈마를 원활히 발생시키기 위하여 상기 플라즈마 장치의 전원공급장치로 10 내지 70 kW의 전력을 공급하며, 전기에너지에 의해 아크가 형성되고, 열플라즈마 발생기체로 사용된 아르곤 가스에 의하여 약 10,000K의 초고온 플라즈마가 생성된다. 상기와 같이 10 내지 70 kW의 전력을 유지한 상태로 아르곤 가스를 발생가스로 하여 발생된 초고온의 열플라즈마는 열처리방식이나 연소방식에 의해 발생된 열플라즈마보다 높은 온도에서 발생되는 효과가 있다. 이 때, 본 발명은 공지의 고주파 열플라즈마(RF) 방법을 적절히 변형하여 사용할 수 있고, 기존의 열플라즈마 처리장치를 사용하여도 무방하다.
- [74] 다음으로 기화된 나노입자 형성물질을 그라파이트 표면에 결정화시키는 단계를 수행할 수 있다. 기화된 나노입자 형성물질을 그라파이트 표면에서 결정화시키기 위해, 켄칭(quenching) 가스를 사용할 수 있다. 이때, 상기 켄칭 가스로 응축 또는 급냉시켜 나노입자의 성장을 억제시키면서 결정화시킬 수 있다.
- [75] 상술한 방법으로 제조된 그라파이트-나노입자 결합체에 카테콜아민층을 형성시키는 단계를 수행할 수 있으며, 구체적으로 약염기성 도파민수용액에 그라파이트-나노입자 결합체를 디핑시키는 단계; 및 상기 그라파이트-나노입자 결합체 표면에 폴리도파민층을 형성시키는 단계를 수행할 수 있다.
- [76] 먼저, 상기 약염기성 도파민 수용액을 제조하는 방법은 특별히 한정된 것은 아니나, pH 8 ~ 14 염기성의 트리스 완충용액(10mM, tris buffer solution), 보다 바람직하게는 바다 속 환경과 동일한 염기성 조건인 pH 8.5 염기성의 트리스 완충용액에 도파민을 용해시켜 제조할 수 있으며, 이 때, 상기 약염기성 도파민 수용액의 도파민 농도는 0.1 ~ 5mg/ml, 바람직하게 2mg/ml 일 수 있다.
- [77] 준비된 약염기성 도파민 수용액에 그라파이트-나노입자 결합체를 디핑 후 도파민이 염기성 및 산화 조건 하에서 자발적으로 고분자화 반응을 거쳐 그라파이트-나노입자 결합체에 폴리도파민층인 카테콜아민층을 형성시킬 수

있다. 이때, 산화제를 더 구비시켜 폴리도파민층이 형성될 수 있으며, 산화제 없이 공기 중의 산소기체를 산화제로도 이용할 수 있고, 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다.

- [78] 이때, 디핑 시간은 폴리도파민층의 두께를 결정하는데, pH 8 ~ 14이고, 도파민 농도가 0.1 ~ 5mg/ml 인 도파민 수용액을 이용하는 경우, 5 ~ 100nm 두께로 카테콜아민층을 형성하기 위해서는 바람직하게 약 0.5 ~ 24시간 동안 디핑하는 것이 바람직하다. 순수한 판상의 그라파이트에는 이와 같은 방법을 통해서 그라파이트 표면에 도파민 코팅층을 거의 형성시키지 못하나, 나노입자로 인하여 카테콜아민층이 나노입자 상에 형성될 수 있다. 한편, 상술한 고분자층의 형성방법으로 디핑을 예시했으나 이에 한정되는 것은 아니며, 블레이드(blade) 코팅, 플로우(flow) 코팅, 캐스팅(casting), 프린팅 방법, 트랜스퍼(transfer) 방법, 브러싱, 또는 스프레이(spraying) 등의 공지된 방법을 통해 고분자층을 더 형성시킬 수 있다.
- [79] 한편, 카테콜아민층이 형성된 그라파이트 복합체에 고분자층을 더 구비시키기 위해서 목적하는 고분자화합물이 용해된 용해액 또는 용융된 용융액에 그라파이트 복합체를 기계적으로 혼합하여 고분자층이 형성된 그라파이트 복합체를 제조할 수 있다.
- [80] 다음으로, 상술한 그라파이트 복합체(101)와 혼합되는 그라파이트에 대해 설명한다.
- [81] 상기 그라파이트는 상술한 그라파이트 복합체(101)의 2차 응집을 억제하여 그라파이트 복합체가 고분자화합물 내 더욱 잘 분산되도록 하고, 보다 경량화된 복합체를 구현하도록 하는 기능을 담당한다. 상술한 그라파이트 복합체는 고분자화합물과 섞였을 때 유동성, 분산성, 계면의 결합특성을 향상시키기 위하여 카테콜아민층을 구비하나, 오히려 상기 카테콜아민층으로 인해 그라파이트 복합체끼리의 2차 응집이 발생할 수 있어서 이를 통해 구현된 복합체에서 그라파이트 복합체의 분산성이 저해될 수 있다. 상기 그라파이트는 그라파이트 복합체 간의 2차 응집을 방지함으로써, 이를 통해 구현된 복합체의 영역별로 균일한 물성을 발현시키고, 응집으로 인한 기계적 강도의 저하를 방지할 수 있다.
- [82] 상기 그라파이트는 그라파이트 플레이크(Expandable graphite flake), 팽창흑연(Expanded graphite), 구형 그라파이트 중 어느 하나 이상일 수 있으며, 이를 통해 구현된 그라파이트 복합체는 또 다른 효과를 발현하거나 더욱 상승된 물성을 발현할 수 있도록 할 수 있다. 상기 구형 그라파이트는 일예로 그라파이트 플레이크를 연마하여 형상을 구형으로 제조한 것일 수 있다.
- [83] 상기 그라파이트 플레이크 및 팽창 그라파이트는 상기 그라파이트 복합체와 혼합 시에 보다 상승된 방열성능, 특히 수평 열전도에 있어서 향상된 성능을 발현시키고, 이들이 고분자매트릭스에 분산된 상태에서 우수한 기계적 강도를 발현시킬 수 있다. 또한, 상기 구상 그라파이트는 그라파이트 복합체의

수직열전도도를 보완할 수 있다. 그라파이트는 소재 자체가 수평방향으로의 열전도도 및 전기전도도가 우수한 반면에 수직방향으로는 위와 같은 물성이 좋지 않다. 이는 수평방향으로는 금속결합과 같이 자유전하의 이동이 가능한 반면에 수직방향으로는 그렇지 못함에 기인하며, 이로 인하여 일반적인 그라파이트를 포함하여 구현된 복합체는 수평 열전도도와 수직 열전도도가 달라서 수직방향으로의 열 발산 효과가 미약한 불리함이 있다. 그러나 상기 구상 그라파이트의 경우 이와 같은 불리함을 개선하여 수직방향으로의 열전도도를 향상시킬 수 있다.

[84] 상기 그라파이트 플레이크는 평균입경이 $10\mu\text{m} \sim 1,000\mu\text{m}$ 이며, 보다 바람직하게는 $50\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$ 일 수 있다. 또한, 상기 팽창흑연은 평균입경이 $50\mu\text{m} \sim 1,000\mu\text{m}$ 이고, 보다 바람직하게는 $100\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$ 일 수 있다. 또한, 상기 구형 그라파이트는 평균입경이 $10\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 보다 바람직하게는 $20\mu\text{m} \sim 40\mu\text{m}$ 일 수 있다. 종류별 그라파이트의 평균입경이 위의 수치범위를 만족할 경우 열전도를 향상 이외에 상술한 그라파이트 복합체의 응집현상을 억제하는데 매우 유리할 수 있다. 또한, 입경이 매우 작아짐에 따라서 발생하는 펠렛, 그라파이트 복합체나 방열복합체에서의 그라파이트 탈리문제가 억제될 수 있다. 또한, 종류별로 바람직한 입경범위 상한값을 초과한 그라파이트를 사용시 발생하는 용융된 고분자화합물 내에서 그라파이트의 유동성 저하 현상이나, 그라파이트 복합체나 방열복합체에서 표면품질 저하를 방지할 수 있다.

[85] 한편, 상기 그라파이트의 평균입경을 상술한 그라파이트 복합체(101)의 평균입정보다 작게 할 경우 일부 그라파이트 간의 연결이 발생할 수 있는데, 이 경우 큰 입자와 작은 입자 간의 바이모달(bi-modal)을 이용하여 고분자 매트릭스 내 최밀 충전이 가능하며, 열전도 특성이 더욱 우수해 질 수 있다.

[86]

[87] 또한, 상기 그라파이트 플레이크, 팽창흑연 및 구형 그라파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그라파이트는 그라파이트 복합체 중량을 기준으로 바람직하게는 1: 1 ~ 25 중량비, 보다 바람직하게는 1: 1 ~ 15 중량비, 보다 더 바람직하게는 1: 1 ~ 10 중량비로 구비될 수 있다. 만일 상기 그라파이트가 그라파이트 복합체 중량에 기준해 1:1 중량비 미만으로 구비되는 경우 그라파이트로 인한 방열성능의 향상 정도가 미미하며, 그라파이트 복합체의 응집을 막기 어려울 수 있다. 또한, 방열필러의 대부분을 그라파이트 복합체로 구비해야 함에 따른 원가상승의 우려가 있으며, 구현되는 복합체의 경량화에 바람직하지 못할 수 있다. 한편, 만일 상기 그라파이트가 그라파이트 복합체 중량에 기준해 1:25 중량비를 초과하여 구비되는 경우 구현되는 복합체의 방열특성의 저하가 유발될 수 있고, 특히 복합체의 제조과정에서 방열필러 유동성 저하로 복합체의 표면부보다 중심부에 집중배치 될 수 있어서 전도되는 열의 방사특성 및 수직 열전도 성능이 현저히 저하될 수 있다. 또한, 이중 재질 간 계면접합 특성의 저하로 인해 고분자매트릭스와 그라파이트 사이의 계면,

- 고분자매트릭스와 지지부재 간 계면에서 이격이 더욱 빈번하고 심해질 수 있다.
- [88] 한편, 본 발명의 일 실시예에 의하면, 그라파이트 복합체(101)와 함께 구비되는 그라파이트는 팽창흑연일 수 있으며, 이를 통해 다른 종류의 그라파이트에 대비하여 인장강도, 굴곡강도, 굴곡탄성율, 충격강도와 같은 기계적 강도 및 수평 열전도도를 높은 수준으로 달성할 수 있다.
- [89] 또한, 본 발명의 일 실시예에 의하면, 그라파이트 복합체(101)와 함께 구비되는 그라파이트는 그라파이트 플레이크와 팽창흑연일 수 있다. 이 경우 우수한 인장강도와 더불어 특히 팽창흑연이나, 그라파이트 플레이크를 1종만 구비한 경우에 대비하여 상승된 수평 열전도도를 달성하기에 매우 유리할 수 있다. 보다 바람직하게는 상기 팽창흑연과 그라파이트 플레이크는 1: 1 ~ 20 중량비, 보다 더 바람직하게는 1: 1 ~ 13 중량비로 포함될 수 있다. 만일 상기 팽창흑연의 중량을 기준해 그라파이트 플레이크가 1:1 중량비 미만으로 구비되는 경우에 용융된 고분자화합물과 혼합된 상태에서 유동성을 저하시켜 사출성형이 어려워질 수 있는 등 본 발명의 목적을 달성하기 어려울 수 있다. 또한, 만일 상기 팽창흑연의 중량을 기준해 그라파이트 플레이크가 1:25 중량비를 초과해 구비되는 경우에는 상승된 수평 열전도도 특성을 달성하기 어려울 수 있다. 또한, 인장강도, 굴곡탄성율, 충격강도 등의 기계적 강도 저하의 우려가 있다.
- [90] 상술한 그라파이트 복합체 및 그라파이트를 포함하는 그라파이트 조성물은 열가소성 고분자화합물과 함께 그라파이트 복합체 제조용 마스터배치로 구현된다.
- [91] 상기 그라파이트 복합체 및 그라파이트는 마스터배치 전체 중량 중 20 ~ 80 중량%, 보다 바람직하게는 30 ~ 70중량%로 구비될 수 있으며, 만일 20 중량% 미만일 경우 마스터배치를 통해 제조된 그라파이트 복합체의 열전도성 등의 물성이 저하될 수 있다. 또한, 만일 80 중량%를 초과할 경우 마스터배치의 제조가 어려울 수 있고, 제조된 마스터배치의 크랙, 부서짐이 심해 저장안정성이 열악할 수 있다. 또한, 이를 통해 구현된 복합체 역시 기계적 강도가 현저히 저하될 수 있다.
- [92] 상기 열가소성 고분자화합물은 공지된 열가소성 고분자화합물일 수 있으며, 후술하는 그라파이트 복합체의 고분자매트릭스를 형성하는 물질일 수 있다. 상기 열가소성 고분자화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 혼성 중합체(ABS), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리이미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있다.
- [93] 일례로, 상기 폴리아미드는 나일론6, 나일론66, 나일론11, 나일론610, 나일론12, 나일론46, 나일론9T(PA-9T), 키아나 및 아라미드 등 공지된 폴리아미드계 화합물일 수 있다.

- [94] 일예로, 상기 폴리에스테르는 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET), 폴리트리메틸렌테레프탈레이트(PTT), 폴리부틸렌테레프탈레이트(PBT), 폴리카보네이트 등 공지된 폴리에스테르계 화합물일 수 있다.
- [95] 일예로, 상기 폴리올레핀은 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 폴리아이소부틸렌, 에틸렌비닐알코올 등 공지된 폴리올레핀계 화합물일 수 있다.
- [96] 상기 액정고분자는 용액 혹은 용해된 상태에서 액정성을 나타내는 고분자의 경우 제한 없이 사용될 수 있으며, 공지된 종류일 수 있어서 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다.
- [97] 한편, 상기 그라파이트 복합재 제조용 마스터배치는 강도개선제, 충격개선제, 산화방지제, 열안정제, 광안정제, 가소제, 분산제, 작업개선제, 커플링제, UV흡수제, 대전방지제, 난연제 등 기타 첨가제를 더 구비할 수 있다.
- [98] 상기 강도개선제는 그라파이트 복합재 및 그라파이트를 포함하는 방열필러와 고분자화합물 간의 복합재료 강도를 개선할 수 있는 공지된 성분의 경우 제한없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 탄소섬유, 유리섬유, 유리구슬, 산화지르코늄, 울라스토나이트, 깁사이트, 베마이트, 마그네슘 알루미늄에이트, 돌로마이트, 탄산칼슘, 탄산마그네슘, 운모, 탈크, 탄화규소, 고령토, 황산칼슘, 황산바륨, 이산화규소, 수산화암모늄, 수산화마그네슘 및 수산화알루미늄으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 성분을 강도개선제로 포함할 수 있다. 상기 강도개선제는 상술한 그라파이트 조성물 100 중량부에 대해 0.1 ~ 30 중량부로 포함될 수 있으나 이에 한정되는 것은 아니다. 일예로, 상기 강도개선제가 유리섬유가 사용되는 경우 유리섬유의 길이는 2 ~ 8mm일 수 있다.
- [99] 또한, 상기 충격개선제는 그라파이트 복합재/그라파이트와 고분자화합물 간의 복합재료의 유연성, 응력완화성을 발현하여 내충격성을 개선할 수 있는 공지된 성분의 경우 제한없이 사용할 수 있으며, 일예로, 열가소성 폴리우레탄(TPU), 열가소성 폴리올레핀(TPO), 말레산 그라프트된 EPDM, 코어/셸 구조의 탄성입자, 고무계 수지 중 1 종 이상의 성분을 충격개선제로 구비할 수 있다. 상기 열가소성 폴리올레핀은 러버와 유사한 물질군으로써, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌 등 폴리올레핀 블록과 고무질 블록을 갖는 선형 폴리올레핀 블록공중합체나 폴리프로필렌에 에틸렌계 엘라스토머인 에틸렌-프로필렌-다이엔 모노머(EPDM)을 블랜드한 것일 수 있으며, 구체적인 열가소성 폴리올레핀은 공지된 것을 사용할 수 있음에 따라서 본 발명은 이에 대한 구체적 종류에 대한 설명을 생략한다. 또한, 상기 열가소성 폴리우레탄 역시 공지된 것을 사용할 수 있음에 따라서 구체적 종류에 대한 설명을 생략한다. 또한, 상기 코어/셸 구조의 탄성입자는 일예로 상기 코어를 알릴계 수지를 사용할 수 있고, 셸 부분은 열가소성 고분자화합물과의 상용성, 결합력을 증가시킬 수 있도록 반응할 수 있는 관능기를 구비한 고분자 수지일 수 있다.

- [100] 또한, 상기 충격개선제는 그라파이트 조성물 총합 100 중량부에 대해 0.1 ~ 30 중량부로 포함될 수 있으나 이에 한정되는 것은 아니다.
- [101] 또한, 상기 산화방지제는 압출, 사출 시 열 및/또는 전단 응력에 의한 라디칼 발생을 억제하여 열가소성 고분자 화합물의 주쇄가 끊어지는 것을 방지하며, 2차 가공에서 발생하는 열에 의한 변색을 방지하기 위해 구비된다. 상기 산화방지제는 공지된 산화방지제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 트리스(노닐 페닐)포스파이트, 트리스(2,4-디-*t*-부틸페닐)포스파이트, 비스(2,4-디-*t*-부틸페닐)펜타에리트리톨 디포스파이트, 디스테아릴 펜타에리트리톨 디포스파이트 또는 그 밖에 유사한 것들과 같은 유기포스파이트; 알킬화된 모노페놀 또는 폴리페놀; 테트라키스[메틸렌(3,5-디-터트-부틸-4-하이드록시하이드로신나메이트)] 메탄, 또는 그 밖에 유사한 것과 같은 것으로서, 디엔을 갖는 폴리페놀의 알킬화된 반응 생성물; 파라-크레졸 또는 디사이클로펜타디엔의 부틸화된 반응 생성물; 알킬화된 하이드로퀴논; 수산화된 티오디페닐 에테르; 알킬리덴-비스페놀; 벤질 화합물; 모노하이드릭 또는 폴리하이드릭 알코올과 베타-(3,5-디-터트-부틸-4-하이드록시페닐)-프로피온산의 에스테르; 모노하이드릭 또는 폴리하이드릭 알코올과 베타-(5-터트-부틸-4-하이드록시-3-메틸페닐)-프로피온산의 에스테르; 디스테아릴티오프로피오네이트, 디라우릴티오프로피오네이트, 디트리테실티오프로피오네이트, 옥타데실-3-(3,5-디-터트-부틸-1-4-하이드록시페닐)프로피오네이트, 펜타에리스리톨-테트라키스 [3-(3,5-디-터트-부틸-4-하이드록시페닐)프로피오네이트 또는 그 밖에 유사한 것들과 같은 티오알킬 또는 티오아릴 화합물의 에스테르; 베타-(3,5-디-터트-부틸-4-하이드록시페닐)-프로피오닉산의 아미드 또는 그 밖에 유사한 것들, 또는 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 상기 산화방지제는 열가소성 고분자 화합물 100 중량부에 대하여 0.01 내지 0.5 중량부로 구비될 수 있다.
- [102] 또한, 상기 열안정제는 공지된 열안정제의 경우 제한 없이 사용할 수 있으나 이에 대한 비제한적이 예로써, 트리페닐 포스파이트, 트리스-(2,6-디메틸페닐)포스파이트, 트리스-(믹스드 모노-앤드 디노닐페닐)포스파이트(tris-(mixed mono-and di-nonylphenyl)phosphate) 또는 그 밖에 유사한 것과 같은 유기 포스파이트; 디메틸벤젠 포스포네이트 또는 그 밖에 유사한 것과 같은 포스포네이트, 트리메틸 포스페이트, 또는 그 밖에 유사한 것과 같은 포스페이트, 또는 이들의 혼합물을 포함한다. 열 안정제는 열가소성 고분자 화합물 100 중량부에 대하여 0.01 내지 0.5 중량부 포함될 수 있다.
- [103] 또한, 상기 광안정제는 공지된 광안정제의 경우 제한 없이 사용할 수 있으나 이에 대한 비제한적이 예로써, 2-(2-하이드록시-5-메틸페닐)벤조트리아졸,

2-(2-하이드록시-5-테르-옥틸페닐)-벤조트리아졸 및 2-하이드록시-4-n-옥톡시 벤조페논 또는 그 밖에 유사한 것들과 같은 벤조트리아졸 또는 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 광 안정제는 열가소성 고분자화합물 100 중량부를 기준으로 0.1 내지 1.0 중량부로 포함될 수 있다.

[104] 또한, 상기 가소제는 공지된 가소제의 경우 제한 없이 사용할 수 있으나 이에 대한 비제한적인 예로써, 디옥틸-4,5-에폭시-헥사하이드로프탈레이트, 트리스-(옥톡시카르보닐에틸)이소시아누레이트, 트리스테아린, 에폭시화된 콩기름(soybean oil) 또는 그 밖의 유사한 것들과 같은 프탈산 에스테르 또는 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 가소제는 열가소성 고분자 화합물 100 중량부에 대하여 0.5 내지 3.0 중량부로 포함될 수 있다.

[105] 또한, 상기 대전방지제는, 공지된 대전방지제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 글리세롤 모노스테아레이트(monostearate), 소듐 스테아릴 설포네이트, 소듐 도데실벤젠설포네이트, 폴리에테르 블록 아미드, 또는 이들의 혼합물을 포함하며, 이들은 예를 들어, 상표명 이르가스탯(Irgastat)의 BASF; 상표명 PEBAX의 알케마(Arkema); 및 상표명 펠레스탯(Pelestat)의 산요 케미컬 인더스트리즈(Sanyo Chemical industries)로부터 상업적으로 얻을 수 있다. 상기 대전방지제는 열가소성 고분자화합물 100 중량부에 대하여 0.1 내지 2.0 중량부로 포함될 수 있다.

[106] 또한, 상기 작업개선제는 공지된 작업개선제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 금속 스테아레이트, 스테아릴 스테아레이트, 펜타에리트리톨 테트라스테아레이트, 밀납(beeswax), 몬탄 왁스(montan wax), 파라핀 왁스, 폴리에틸렌 왁스 또는 그 밖에 유사한 것들 또는 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 상기 작업개선제는 열가소성 고분자화합물 100 중량부에 대하여 0.1 내지 1.0 중량부로 포함될 수 있다.

[107] 또한, 상기 UV 흡수제는, 공지된 UV 흡수제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 하이드록시벤조페논; 하이드록시벤조트리아졸; 하이드록시벤조트리아진; 시아노아크릴레이트; 옥사닐라이드(oxanilides); 벤족사지논(benzoxazinones); 2-(2H-벤조트리아졸-2-일)-4-(1,1,3,3,-테트라메틸부틸)-페놀; 2-하이드록시-4-n-옥틸옥시벤조페논; 2-[4,6-비스(2,4-디메틸페닐)-1,3,5-트리아진-2-일]-5-(옥틸옥시)-페놀; 2,2'-(1,4-페닐렌)비스(4H-3,1-벤족사진-4-원); 1,3-비스[(2-시아노-3,3-디페닐아크릴로일)옥시]-2,2-비스[(2-시아노-3,3-비페닐아크릴로일)옥시]메틸]프로판; 2,2'-(1,4-페닐렌)비스(4H-3,1-벤족사진-4-원); 1,3-비스[(2-시아노-3,3-디페닐아크릴로일)옥시]-2,2-비스[(2-시아노-3,3-디페닐아크릴로일)옥시]메틸]프로판; 입경이 100nm미만인 산화 티타늄, 산화 세륨 및 산화 아연과 같은 나노-크기 무기 물질; 또는 그 밖에 유사한 것들, 또는 이들의

혼합물을 포함한다. 상기 UV 흡수제는 열가소성 고분자화합물 100 중량부를 기준으로 0.01 내지 3.0 중량부 포함될 수 있다.

- [108] 또한, 상기 분산제는 카본계 방열필러의 분산제로 공지된 성분인 경우 제한 없이 사용할 수 있다. 이에 대한 비제한적인 예로써, 폴리에스테르계 분산제, 폴리페닐렌에테르계 분산제; 폴리올레핀계 분산제, 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체 분산제, 폴리아릴레이트계 분산제, 폴리아미드계 분산제, 폴리아미드이미드계 분산제, 폴리아릴설폰계 분산제, 폴리에테르이미드계 분산제, 폴리에테르설폰계 분산제, 폴리페닐렌 설파이드계 분산제, 폴리이미드계 분산제; 폴리에테르케톤계 분산제, 폴리벤족사졸계 분산제, 폴리옥사디아졸계 분산제, 폴리벤조티아졸계 분산제, 폴리벤즈이미다졸계 분산제, 폴리피리딘계 분산제, 폴리트리아졸계 분산제, 폴리피롤리딘계 분산제, 폴리디벤조퓨란계 분산제, 폴리설폰계 분산제, 폴리우레아계 분산제, 폴리우레탄계 분산제, 또는 폴리포스파젠계 분산제 등을 들 수 있으며, 이들의 단독 또는 이들 중에 선택된 2종 이상의 혼합물 또는 공중합체를 사용할 수도 있다.
- [109] 상기 분산제는 그라파이트 조성물 100 중량부에 대해 0.2 ~ 6.0 중량부로 포함될 수 있다.
- [110] 또한, 상기 커플링제는 공지된 커플링제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 이에 대한 비제한적인 예로써, 실란계 커플링제, 아민계 커플링제, 말레산 그래프트 폴리프로필렌(MAH-g-PP) 및 말레산 그래프트 EPDM(MAH-g-EPDM)으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 병용할 수 있다. 또한, 상기 커플링제는 열가소성 고분자화합물 100 중량부를 기준으로 0.01 내지 8.0 중량부 포함될 수 있다.
- [111] 또한, 상기 난연제는 예를 들어, 할로젠화된 난연제, BC58 및 BC52와 같은 유사 테트라브로모 비스페놀 A 올리고머(like tetrabromo bisphenol A oligomers), 브롬화된 폴리스티렌 또는 폴리(디브로모-스티렌), 브롬화된 에폭시, 데카브로모디페닐렌옥사이드, 펜타브로모벤질 아크릴레이트 모노머, 펜타브로모벤질 아크릴레이트 폴리머, 에틸렌-비스(테트라브로모프탈이미드), 비스(펜타브로모벤질)에탄, $Mg(OH)_2$ 및 $Al(OH)_3$ 와 같은 금속 하이드록사이드, 멜라민 시아누레이트, 레드 포스פור스(red phosphorus)와 같은 포스퍼 기반 FR 시스템, 멜라민 폴리포스페이트, 포스페이트 에스테르, 금속 포스피네이트, 암모니움 폴리포스페이트, 팽창 가능한 그라파이트, 소듐 또는 포타슘 퍼플루오로부탄 설페이트, 소듐 또는 포타슘 퍼플루오로옥탄 설페이트, 소듐 또는 포타슘 디페닐설폰설포네이트 및 소듐- 또는 포타슘-2,4,6-트리클로로벤조네이트 및 N-(p-톨릴설포닐)-p-톨루엔설파이드 포타슘 염, N-(N'-벤질아미노카르보닐) 설파닐이미드 포타슘 염, 또는 이들의 혼합물 포함하나, 이에 제한되지는 않는다. 상기 난연제는 그라파이트 조성물 100 중량부를 기준으로 30 중량부 이내로 포함될 수 있다.

- [112] 상술한 그라파이트 조성물, 열가소성 고분자화합물 및 기타 첨가제를 포함하여 마스터배치를 제조하는 공정은 통상적인 공지된 방법일 수 있으며, 일례로, 제조된 마스터배치는 펠렛 형상일 수 있고, 통상적인 펠렛의 제조방법을 통해 제조할 수 있음에 따라서 본 발명은 이에 대한 구체적인 설명을 생략한다.
- [113] 다음으로, 본 발명의 일 실시예에 의한 그라파이트 복합재에 대해 설명한다.
- [114] 도 2 및 도 3에 도시된 것과 같이 그라파이트 복합재(1000,1000')는 열가소성 고분자화합물로 성형된 고분자매트릭스(200) 및 상기 고분자매트릭스 내부를 포함하여 분산된 그라파이트 복합체(101) 및 그라파이트(102,103)를 포함하는 본 발명에 따른 그라파이트 조성물이 포함된 방열필러(100)로 구현되며, 상기 고분자매트릭스(200)의 외부면에는 보호코팅층(300)이 더 구비될 수 있다.
- [115] 상기 방열필러(100) 내 그라파이트 복합체(101) 및 그라파이트(102,103)는 도 2 또는 도 3에는 고분자매트릭스(200)의 내부에만 분산되는 것으로 도시하였으나, 이와 다르게 외부면에도 노출되도록 배치될 수 있다.
- [116] 상기 그라파이트(102,103)는 그라파이트 플레이크, 구형 그라파이트, 팽창된 그라파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는데, 도 2에 도시된 것과 같이 방열필러(100)는 1종의 그라파이트, 일례로 팽창흑연(102)이 구비할 수 있다. 또는 도 3과 같이 상기 방열필러(100)는 2종의 그라파이트로써, 그라파이트 플레이크(102) 및 구형 그라파이트(103)를 포함할 수 있고, 이를 통해 향상된 수직열전도도 특성 및 수평 열전도 특성을 동시에 발현하기에 유리할 수 있다. 또는, 2종의 그라파이트 조합으로 팽창흑연과 그라파이트 플레이크를 포함할 수 있고, 이를 통해 상술한 것과 같이 복합재의 우수한 기계적 강도와 상승된 수평 열전도성능을 발현할 수 있다.
- [117] 상기 그라파이트 복합체(101) 및 그라파이트(102,103)를 포함하는 방열필러는 그라파이트 복합재(1000) 전체 중량에 대해 10 ~ 90중량%, 보다 바람직하게는 20 ~ 80중량%, 보다 더욱 바람직하게는 30 ~ 70중량%로 구비될 수 있다. 만일 방열필러가 10중량% 미만으로 구비될 경우 목적하는 방열성능, 차폐 성능을 발현하지 못할 수 있다. 또한, 만일 90중량%를 초과하여 구비되는 경우 복합재의 기계적 강도가 현저히 저하되고, 사출 등의 성형성이 저하되며, 복잡한 형상으로의 구현이 어려울 수 있다.
- [118] 상기 고분자매트릭스(200)의 형상 및 크기는 제한이 없다. 일례로, 상기 고분자매트릭스는 판상일 수 있다.
- [119] 한편, 상기 보호코팅층(300)은 고분자매트릭스(200)를 외부의 물리/화학적 자극으로부터 보호하고, 고분자매트릭스(200)에 구비되는 그라파이트 복합체(101)나 그라파이트(102,103)의 탈리를 방지하는 기능을 수행한다. 또한, 상기 보호코팅층(300)이 절연재질로 구현된 경우 전자장치의 방열부재에 요구되는 절연성을 제공할 수 있다.
- [120] 상기 보호코팅층(300)은 공지된 열경화성 고분자화합물 또는 열가소성 고분자화합물로 구현될 수 있다. 상기 열경화성 고분자화합물은 에폭시계,

우레탄계, 에스테르계 및 폴리아미드계 수지로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있다. 또한, 상기 열가소성 고분자화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리카톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리아미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.

[121] 상기 보호코팅층(300)은 두께가 $0.1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니며, 목적에 따라 변경하여 구현할 수 있다.

[122] 한편, 상기 보호코팅층(300)은 보다 향상된 방열 및 외부 공기중으로 열의 방사특성을 발현하기 위하여 금속계, 탄소계, 및/또는 세라믹계의 공지된 방열필러를 더 구비할 수 있다. 또한, 절연성이 동시에 요구될 경우 산화알루미늄, 보론나이트라이드, 탈크, 산화마그네슘, 실리콘카바이드 등과 같은 공지된 절연성 방열필러를 구비할 수 있다. 상기 보호코팅층(300)이 방열코팅층일 경우 두께는 $10 \sim 50 \mu\text{m}$ 일 수 있으며, 두께가 $50 \mu\text{m}$ 를 초과할 경우 방사특성이 오히려 현저히 저하될 수 있는 문제가 있다.

[123] 또한, 상기 보호코팅층(300)은 안료를 포함할 수 있다. 그라파이트 복합재(1000,1000')는 방열필러로 그라파이트가 주체로 포함됨에 따라서 색상이 어둡거나 검은색에 가깝게 구현될 수 있고, 이 경우 색상문제로 일부 용도에서는 사용이 기피될 수 있다. 이에 상기 보호코팅층(300)은 목적하는 색상을 발현시키는 공지된 안료를 더 포함할 수 있다.

[124] 다만, 보호코팅층(300)의 두께가 얇을 경우 안료의 추가에도 목적하는 색상을 발현시킬 수 없는 경우가 있을 수 있다.

[125] 이에 본 발명의 다른 구현예에 따르면, 도 4 및 도 5에 도시된 것과 같이 그라파이트 복합재(2000,2000')는 심부(211,221)와 상기 심부(210,220)를 둘러싸는 피복부(212a/212b,222a/222b)를 포함하는 고분자매트릭스(210,220)로 구현되며, 상기 심부(211,221)에는 제1방열필러(100')를 구비하고, 상기 피복부(212a/212b,222a/222b)에는 안료(400)를 포함하여 심부의 색상과 다른 소정의 목적하는 색상을 발현할 수 있다.

[126] 상기 제1방열필러(100')는 상술한 방열필러(100)에 대한 설명과 동일하여 생략한다.

[127] 또한, 상기 심부(210,220) 및 피복부(212a/212b,222a/222b)는 열가소성 고분자화합물을 포함하여 성형된 것으로서, 일예로 이중사출을 통해 구현된 것일 수 있다. 구체적으로 먼저, 소정의 형상으로 심부를 사출한 후 제조된 심부 외부를 둘러싸도록 피복부를 사출하여 고분자매트릭스를 구현할 수 있다. 다만, 이에 제한되는 것은 아니며 심부와 피복부를 동시 사출하여 고분자매트릭스를 구현할 수 있다. 이때, 상기 심부(210,220)와 피복부(212a/212b,222a/222b)를 형성하는 열가소성 고분자화합물은 동일하거나 또는 상이해도 무방하며,

목적에 따라 변경하여 실시할 수 있다.

- [128] 또한, 상기 피복부(212a/212b, 222a/222b)는 심부(210, 220)의 색상이 밖으로 비치는 것을 방지하기 위하여 바람직하게는 두께가 300 μ m ~ 1cm일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니며, 심부의 채도/명도 및 피복부의 재질 종류, 포함된 안료의 함량 등을 고려하여 변경될 수 있다.
- [129] 상기 안료(400)의 함량은 발현하고자 하는 색상 종류와 정도에 따라 달라질 수 있으므로 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다.
- [130] 한편, 피복부(212a/212b, 222a/222b)의 두께가 두꺼워질 경우 심부(211, 221)의 방열, 방사특성을 저해할 수 있으므로 바람직하게는 피복부(212a/212b, 222a/222b)는 방열, 방사특성의 저하를 최소화하기 위하여 제2방열필러(500)를 더 포함할 수 있다. 상기 제2방열필러(500)는 공지된 방열필러일 수 있으며, 일례로 금속계, 탄소계, 및/또는 세라믹계의 공지된 방열필러를 더 구비할 수 있다. 또한, 절연성이 동시에 요구될 경우 산화알루미늄, 보론나이트라이드, 탈크, 산화마그네슘, 실리콘카바이드 등과 같은 공지된 절연성 방열필러를 구비할 수 있다. 또한, 상기 제2방열필러(500)의 함량은 피복부 내에 안료의 함량, 피복부의 두께, 피복부를 형성하는 주재수지의 종류 등을 고려하여 적절히 변경될 수 있으므로 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다.
- [131] 또한, 도 4와 같이 피복부(212a/212b, 222a/222b)의 외부에 안료(400)나 방열필러(500) 등의 탈리를 방지하고자 보호코팅층(310)이 더 구비될 수 있다. 상기 보호코팅층(310)은 상술한 보호코팅층(300)에 대한 설명과 동일하여 구체적인 설명은 생략한다.
- [132]
- [133] 한편, 상술한 그라파이트 복합재는 지지부재와 함께 방열복합재로 구현될 수 있다. 상기 그라파이트 복합재는 우수한 방열특성과 경량성을 발현할 수 있으나, 일부 용도에 있어서 높은 수준의 기계적 강도가 함께 요구되는 경우 사용이 제한될 수 있다. 이에 기계적 강도를 보완할 수 있는 지지부재가 함께 구비됨을 통해 방열특성과 기계적 강도를 동시에 달성할 수 있는 이점이 있다.
- [134] 상기 지지부재는 방열복합재의 기계적 강도를 향상시키면서 소정의 방열성능을 발현하는 기능을 수행한다. 상기 지지부재는 상술한 고분자매트릭스와 상용성이 우수하여 고분자매트릭스와 지지부재간 계면에서 쉽게 이격되지 않으면서도 얇은 두께에도 기계적 강도가 우수하고, 사출성형 될 수 있을 정도의 내열성을 갖춤과 동시에 소정의 열전도도를 갖는 재질인 경우 제한 없이 사용될 수 있다. 이에 대한 비제한적인 예로써, 상기 지지부재는 고분자화합물, 세라믹, 금속 등 공지의 재료로 형성된 것일 수 있고, 일례로 열전도성의 향상을 도모하기 위해 금속일 수 있다. 다만, 상기 지지부재가 고분자매트릭스와 이종의 재질인 경우 계면에서의 접합특성이 저하될 우려가 있고, 이 경우 고분자매트릭스가 쉽게 지지부재에서 벗겨지거나 크랙이 발생할

우려가 있다. 또한, 크랙이나 박리는 해당 부분으로 수분 등 이물질의 침투를 유발하여 내구성을 더욱 감소시킬 수 있는 우려가 있다.

- [135] 본 발명의 제2구현에는 그라파이트 복합재가 기계적강도의 보완을 위해 고분자화합물과 이종재질의 지지부재 특히, 금속의 지지부재와 계면을 형성하도록 제조되는 방열복합재의 계면접합 특성의 향상을 위한 것으로써, 이에 대해 구체적으로 설명하면 이하와 같다.
- [136] 도 6 내지 9를 참고하면, 본 발명의 일 실시예에 의한 방열복합재(3000,3001,3002,3003)는 고분자매트릭스(200), 상기 고분자매트릭스(200)와 적어도 하나의 계면을 형성하는 금속지지층(600,601,602,603) 및 그라파이트 복합체(101)를 포함하여 상기 고분자매트릭스(200)에 분산된 방열필러(100)로 구현된다.
- [137] 상기 고분자매트릭스(200)는 금속지지층(600,601,602,603) 또는 외부 열원으로부터 추출된 열을 전달받아 외부로 열을 전도 및/또는 방사하는 기능을 담당한다. 상기 고분자 매트릭스(200)는 방열복합재의 몸체로써, 후술하는 방열필러(100) 및 금속지지층(600,601,602,603)과 상용성이 좋고, 방열필러(100)의 분산을 저해하지 않으면서도 바람직하게는 사출성형이 가능한 고분자화합물로 구현된 경우 그 제한은 없다. 상기 고분자 매트릭스(200)는 상술한 제1구현에서 그라파이트 복합부재에서의 고분자 매트릭스와 동일하므로 이하 구체적인 설명은 생략한다.
- [138] 지지부재로써, 상기 금속지지층(600,601,602,603)은 방열복합재(3000,3001,3002,3003)의 기계적 강도를 향상시키면서 소정의 방열성능을 발현하는 층이다. 상기 금속지지층(600,601,602,603)은 상술한 고분자매트릭스와 상용성이 우수하여 고분자매트릭스와 금속지지층 간 계면에서 쉽게 이격되지 않으면서도 얇은 두께에도 기계적 강도가 우수하고, 사출성형 될 수 있을 정도의 내열성을 갖춤과 동시에 소정의 열전도도를 갖는 금속재질인 경우 제한 없이 사용될 수 있다. 이에 대한 비제한적인 예로써, 상기 금속지지층(600,601,602,603)은 알루미늄, 마그네슘, 철, 티타늄 및 구리로 이루어진 군에서 선택된 1종의 금속 또는 적어도 1종의 금속이 포함된 합금일 수 있다.
- [139] 또한, 상기 금속지지층(600,601,602,603)은 방열복합재(3000,3001,3002,3003) 전체두께에 대하여 두께가 바람직하게는 0.5 ~ 90%, 보다 바람직하게는 3 ~ 50%를 가질 수 있다. 만일 금속지지층((600,601,602,603)의 두께가 방열복합재(3000,3001,3002,3003) 전체두께에 대하여 0.5% 미만일 경우 목적하는 수준의 기계적 강도, 방열성능을 담보하기 어렵다. 또한, 만일 90%를 초과할 경우 목적하는 수준의 방열성능을 발현하기 어렵고, 복잡한 형상으로서의 성형성도 저하될 수 있다. 다만, 이에 제한되는 것은 아니며 금속지지층((600,601,602,603)의 두께는 방열복합재(3000,3001,3002,3003)에 요구되는 기계적 강도를 고려하여 적절히 변경될 수 있다.

- [140] 또한, 상기 금속지지층((600,601,602,603)은 소정의 넓이를 갖는 판상 형태이거나 사각 또는 원형 등 소정의 형상을 갖는 테두리 부재의 내측에 복수개의 와이어 또는 바가 소정의 간격으로 이격되어, 평행구조, 격자구조, 허니컴 구조 및 이들이 상호 조합된 다양한 구조를 갖는 형상일 수 있다.
- [141] 상기 금속지지층((600,601,602,603)은 도 6과 같이 고분자매트릭스(200) 내부에 위치하여 전면에서 고분자매트릭스(200)와 계면을 형성하거나, 도 7과 같이 금속지지층(301) 하부면이 고분자매트릭스(200)에 접하지 않도록 위치할 수 있다. 이때, 도 8과 같이 금속지지층(302)은 하부면을 제외한 나머지 면과 고분자매트릭(200) 간에 계면을 형성하도록 구비되거나 도 9와 같이 금속지지층(303)은 상부면만 고분자매트릭(200)와 계면을 형성하도록 구비될 수 있다.
- [142] 상기 방열필러(100)는 그래파이트 복합체(101)를 포함한다. 상기 그래파이트 복합체(101)는 도 1a 및 도 1b에 도시된 것과 같이, 그래파이트(10) 표면에 결합된 나노입자(20)를 포함한다.
- [143] 상기 그래파이트(10)에 대한 설명은 상술한 본 발명의 제1구현에서의 그래파이트 복합체 중 그래파이트에 대한 설명과 동일하므로 이하 구체적인 설명을 생략한다.
- [144] 다음으로 그래파이트(10)의 표면에 결합된 나노입자(20)는 그래파이트 복합체(101)가 상술한 고분자매트릭스(200) 및/또는 금속지지층((600,601,602,603)과 형성한 계면에서 앵커로써 기능하기 위하여 그래파이트(10)의 표면에 구비된다. 이를 통해 그래파이트 복합체(101)와 고분자매트릭스(200) 간 계면의 들뜸이나 고분자매트릭스(200)가 금속지지층((600,601,602,603)에서 들뜨는 이격현상을 방지할 수 있다. 또한, 상기 나노입자(20)는 그래파이트(10)에 카테콜아민층을 더 구비시킬 수 있는 매개체로써 기능한다.
- [145] 먼저, 상기 나노입자(20)의 앵커로써 기능에 대해 설명한다. 방열복합체의 기계적 강도를 향상시키기 위하여 구비시킨 금속지지층((600,601,602,603)은 이종 재질인 고분자화합물과의 상용성 부족으로 인하여 고분자매트릭스(200)와 형성한 계면의 접착력이 좋지 못하여 들뜬 부분이 존재하거나 사용 중 충격 등에 의해 계면의 들뜸, 고분자매트릭스의 크랙, 박리가 쉽게 발생할 수 있는 우려가 있다.
- [146] 또한, 상기 금속지지층((600,601,602,603)은 방열필러(100)와 계면을 형성하는 경우에도 계면 들뜸 현상이 쉽게 발생할 수 있다. 즉, 일반적인 방열필러가 금속지지층에 인접하게 배치되어 두 재질 간 계면을 형성할 경우 상기 계면은 접합력이 거의 없기 때문에 해당 계면부분에서 고분자매트릭스(200)가 금속지지층((600,601,602,603)에서 들뜨는 이격이 발생하기 쉽다. 이를 도 10을 참고로 설명하면, 나노입자와 같은 앵커가 표면에 형성되지 않은 일반적인 방열필러(102)의 경우 금속지지층(600)과 맞닿아 계면이 생길 수 있는데,

이종재질로 인하여 계면접합력이 매우 좋지 않고, 해당 계면(B)에서 이격이 발생할 수 있으며, 발생한 이격은 진동 등에 의해 더 큰 이격을 유발할 수 있고, 종국적으로 해당 부분에서 고분자매트릭스(200)의 크랙, 박리가 발생할 수 있다.

- [147] 그러나 그라파이트 복합체(101)에 구비된 나노입자(20) 중에서 금속지지층(600)과 접하는 나노입자는 그라파이트(10)와 금속지지층(300) 간 계면에서 앵커로써 기능하며, 고분자매트릭스(200)와 접하는 나노입자는 그라파이트(10)와 고분자매트릭스(200) 간 계면에서 앵커로써 기능함에 따라서 고분자매트릭스(200)가 금속지지층(600)에서 들뜨는 이격현상을 방지할 수 있다. 또한, 만일 상기 나노입자(20)의 재질이 금속일 경우 계면 접합특성이 보다 유리해질 수 있음에 따라서 방열필러/금속지지층 및/또는 고분자매트릭스/금속지지층 간 계면에서 발생하는 이격현상이 더욱 방지될 수 있다.
- [148] 한편, 나노입자(20)의 카테콜아민층 형성에 대한 매개체로써 기능은 상술한 본 발명의 제1구현예에 대한 설명 중 그라파이트 복합체에 대해 설명부분을 참조한다.
- [149] 또한, 상기 나노입자(20)는 상온에서 고체로 존재하는 금속 또는 비금속 물질일 수 있고, 이에 대한 비제한적이 예로써, 주기율표상의 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 란타넘족, 악티늄족, 전이금속, 전이후금속, 준금속류 등으로부터 선택될 수 있다. 일례로, 상기 나노입자는 Ni, Si, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Cu, Sn, In, Pt, Au, Mg 및 이들의 조합일 수 있고, Cu, Ni 또는 Si인 것이 바람직하다.
- [150] 또한, 상기 나노입자(20)는 평균입경이 5 ~ 100nm, 보다 바람직하게는 5 ~ 65 nm일 수 있고, 더욱 바람직하게는 10 ~ 50nm일 수 있으며, 이를 통해 앵커로써의 기능을 수행하기 적합할 수 있다. 만일 나노입자의 평균입경이 5nm 미만일 경우 금속지지층과 고분자매트릭스 간 계면 접합 특성 향상을 위한 앵커로써의 기능이 미미할 수 있다. 또한, 만일 나노입자의 평균입경이 100nm를 초과할 경우 한정된 면적의 그라파이트 표면 상에 구비되는 나노입자 개수가 줄어들어 목적하는 수준으로 계면접합 특성을 발현하기 어려울 수 있다. 또한, 그라파이트 상에 결합된 입자상으로 제조하기 어렵고, 단독의 나노분말로 제조될 우려가 있다. 또한, 그라파이트 상에 형성되는 경우에도 그라파이트 외부면을 넓게 덮음에 따라서 입자상의 형상으로 구현되기 어렵고, 이로 인해 앵커로써 기능이 저하될 수 있다. 나아가 후술하는 것과 같이 카테콜아민층이 도입되는 경우에 그라파이트 복합체 내 로딩되는 카테콜아민층의 양이 증가함에 따라서 그라파이트 복합체 간 응집이 심화되어 고분자매트릭스 내 그라파이트 복합체의 분산성이 저하되고, 균일한 방열특성을 발현하기 어렵고, 그라파이트 복합체가 응집된 부분의 내구성이 현저히 저하될 우려가 있다.
- [151] 또한, 상기 나노입자(20)는 바람직하게는 결정화된 입자상태로, 날개의 그라파이트(10) 전체 표면적에 대해 10 ~ 70% 면적을 차지하도록 구비될 수 있다. 또한, 상기 나노입자(20)는 그라파이트 복합체(101) 전체 중량에 대해 3 ~

50중량%, 바람직하게는 3 ~ 20중량%로 구비될 수 있다. 이때, 상기 나노입자(20)는 그래파이트(10)와 물리적결합 및/또는 화학결합을 형성하여 더욱 강한 결합력을 발현할 수 있다.

- [152] 또한, 상기 그래파이트 복합체(101)는 적어도 상술한 나노입자(20)의 표면상에 카테콜아민층(30)을 더 구비할 수 있다. 상기 카테콜아민층(30)은 고분자화합물 내에 그래파이트의 우수한 유동성, 분산성 및 그래파이트 복합체와 고분자화합물 간 계면결합 특성을 향상시키며, 동시에 그래파이트 복합체(101)가 상술한 금속지지층(600,601,602,603)과 형성한 계면에서 그래파이트 복합체(101)와 금속지지층(600,601,602,603)간 접합력을 향상시켜 금속지지층(600,601,602,603) 표면에서 발생하는 고분자매트릭스(200)의 이격현상이 더욱 더 감소시킬 수 있다. 또한, 상기 카테콜아민층(30)은 그 자체로 환원력을 가짐과 동시에 층 표면의 카테콜작용기에 아민작용기가 Michael 첨가 반응에 의한 공유결합을 형성함으로써, 카테콜아민층을 접착물질로 사용하는 2차 표면개질이 가능하며, 일례로, 보다 더 향상된 고분자화합물 내 분산성을 발현하기 위한 고분자층(40)을 그래파이트(10)에 더 도입시킬 수 있는 접착물질로써 기능할 수도 있다.

- [153] 상기 카테콜아민층(30)을 형성하는 카테콜아민계 화합물에 대한 설명과, 카테콜 아민층의 형성방법, 두께 등에 대한 구체적 설명은 상술한 제1구현예에 대한 설명을 참조한다.

- [154] 한편, 그래파이트 복합체(101)의 카테콜아민층(30) 상에는 고분자층(40)이 더 피복될 수 있으며, 이에 대한 구체적 설명은 상술한 제1구현예에 대한 설명을 참조한다.

- [155] 또한, 제2구현예에 포함되는 그래파이트 복합체 제조방법에 대한 설명 역시상술한 제1구현예에서 그래파이트 복합체 제조방법의 설명을 참조한다.

- [156] 또한, 본 발명의 일 실시예에 의한 방열복합재(3000)는 방열필러(100)로써, 그래파이트 복합체(101) 이외의 방열필러를 더 구비할 수 있으며, 더 구비될 수 있는 방열필러의 종류는 공지된 방열필러일 수 있다. 다만, 그래파이트 복합체(101)의 응집을 억제하여 그래파이트 복합체(101)가 고분자매트릭스(200) 내 더욱 잘 분산되도록 하고, 보다 경량화된 복합체의 구현을 위하여 상기 방열필러(100)는 그래파이트 플레이크(Expandable graphite flake), 팽창흑연(Expanded graphite), 구형 그래파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그래파이트(102)를 더 포함할 수 있다.

- [157] 이때, 상기 구형 그래파이트는 일례로 그래파이트 플레이크를 연마하여 형상을 구형으로 제조한 것일 수 있다. 상술한 그래파이트 복합체는 고분자화합물과 섞였을 때 유동성, 분산성, 계면의 결합특성을 향상시키기 위하여 카테콜아민층을 더 구비할 수 있으나, 구비되는 카테콜아민층의 함량이 증가할 경우 오히려 상기 카테콜아민층으로 인해 그래파이트 복합체끼리의 응집이 발생될 수 있다. 그래파이트 복합체가 응집된 상태로 고분자매트릭스 내 위치할

경우 방열복합재 전체 영역에서 균일한 방열특성을 발현하기 어렵고, 그래파이트 복합체가 응집되어 위치한 고분자매트릭스 부분의 기계적 강도가 현저히 저하되어 쉽게 크랙이 발생하거나 금속지지층에서 박리될 우려가 있다. 그러나 상기 방열필러에 그래파이트 플레이크, 팽창흑연 및 구형 그래파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그래파이트를 더 구비함을 통하여 그래파이트 복합체 간의 응집을 방지할 수 있고, 구현된 복합체가 영역별로 균일한 기계적 강도, 방열특성, 전자파차폐 등의 물성을 발현하도록 할 수 있다.

[158] 또한, 이에 더하여 상기 구형 그래파이트는 방열복합재의 수직방향 열전도율을 향상시키며, 상기 팽창흑연 및 그래파이트 플레이크는 방열복합재의 열전도율, 기계적 강도를 더욱 향상시킬 수 있다.

[159] 상기 그래파이트 플레이크는 평균입경이 $10\mu\text{m} \sim 1,000\mu\text{m}$ 이며, 보다 바람직하게는 $50\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$ 일 수 있다. 또한, 상기 팽창흑연은 평균입경이 $50\mu\text{m} \sim 1,000\mu\text{m}$ 이고, 보다 바람직하게는 $100\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$ 일 수 있다. 또한, 상기 구형 그래파이트는 평균입경이 $10\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 보다 바람직하게는 $20\mu\text{m} \sim 40\mu\text{m}$ 일 수 있다. 종류별 그래파이트의 평균입경이 위의 수치범위를 만족할 경우 열전도율 향상 이외에 상술한 그래파이트 복합체의 응집현상을 억제하는데 매우 유리할 수 있다. 또한, 입경이 매우 작아짐에 따라서 발생하는 방열복합재에서의 그래파이트 탈리문제가 억제될 수 있다. 또한, 종류별로 바람직한 입경범위 상한값을 초과했을 때 용융된 고분자화합물 내에서 그래파이트의 유동성 저하 현상이나, 방열복합재에서 표면품질 저하를 방지할 수 있다.

[160] 한편, 상기 그래파이트의 평균입경을 상술한 그래파이트 복합체(101)의 평균입정보다 작게 할 경우 일부 그래파이트 간의 연결이 발생할 수 있는데, 이 경우 큰 입자와 작은 입자 간의 바이모달(bi-modal)을 이용하여 고분자 매트릭스 내 최밀 충전이 가능하며, 열전도 특성이 더욱 우수해 질 수 있다.

[161] 또한, 상기 그래파이트 플레이크, 팽창흑연 및 구형 그래파이트 중 어느 하나 이상을 포함하는 그래파이트(102)는 그래파이트 복합체 중량을 기준으로 바람직하게는 1: 1 ~ 25 중량비, 보다 바람직하게는 1: 1 ~ 15 중량비, 보다 더 바람직하게는 1: 1 ~ 10 중량비로 구비될 수 있다. 만일 상기 그래파이트가 그래파이트 복합체 중량에 기준해 1:1 중량비 미만으로 구비되는 경우 추가되는 그래파이트에 따른 방열성능의 향상 정도가 미미하며, 그래파이트 복합체의 응집을 막기 어려울 수 있다. 또한, 방열필러의 대부분을 그래파이트 복합체로 구비해야 함에 따른 원가상승의 우려가 있으며, 구현되는 복합체의 경량화에 바람직하지 못할 수 있다. 한편, 만일 상기 그래파이트가 그래파이트 복합체 중량에 기준해 1:25 중량비를 초과하여 구비되는 경우 구현되는 복합체의 방열특성의 저하가 유발될 수 있고, 특히 복합체의 제조과정에서 방열필러 유동성 저하로 복합체의 표면부보다 중심부에 집중배치될 수 있어서 전도되는 열의 방사특성 및 수직 열전도 성능이 현저히 저하될 수 있다. 또한, 이종 재질 간

계면접합 특성의 저하로 인해 고분자매트릭스와 그래파이트 사이의 계면, 고분자매트릭스와 금속지지층 간 계면에서 이격이 더욱 빈번하고 심해질 수 있다.

[162] 한편, 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 방열필러(100)로써 그래파이트 복합체(101) 이외에 더 구비되는 그래파이트는 팽창흑연일 수 있으며, 이를 통해 다른 종류의 그래파이트에 대비하여 인장강도, 굴곡강도, 굴곡탄성을, 충격강도와 같은 기계적 강도 및 수평 열전도도를 높은 수준으로 달성할 수 있다.

[163] 또한, 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 방열필러(100)로써 그래파이트 복합체(101) 이외에 더 구비되는 그래파이트는 그래파이트 플레이크와 팽창흑연일 수 있다. 이 경우 우수한 인장강도와 더불어 특히 팽창흑연이나, 그래파이트 플레이크를 1종만 구비한 경우에 대비하여 상승된 수평 열전도도 및 기계적 강도의 향상을 달성하기에 유리할 수 있다. 보다 바람직하게는 상기 팽창흑연과 그래파이트 플레이크는 1:1 ~ 20 중량비, 보다 더 바람직하게는 1:1 ~ 13 중량비로 포함될 수 있다. 만일 상기 팽창흑연의 중량을 기준해 그래파이트 플레이크가 1:1 중량비 미만으로 구비되는 경우에 용융된 고분자화합물과 혼합된 상태에서 유동성을 저하시켜 사출성형이 어려워질 수 있는 등 본 발명의 목적을 달성하기 어려울 수 있다. 또한, 만일 상기 팽창흑연의 중량을 기준해 그래파이트 플레이크가 1:25 중량비를 초과해 구비되는 경우에는 상승된 수평 열전도도 특성을 달성하기 어려울 수 있다. 또한, 인장강도, 굴곡탄성을, 충격강도 등의 기계적 강도 저하의 우려가 있다.

[164] 한편, 상기 방열복합재(3000,3001,3002,3003)는 강도개선제, 충격개선제, 산화방지제, 열안정제, 광안정제, 가소제, 분산제, 작업개선제, 커플링제, UV흡수제, 대전방지제, 난연제 등 기타 첨가제를 더 구비할 수 있는데, 이에 대한 구체적인 설명은 제1구현예에서의 설명을 참조한다.

[165] 또한, 방열복합재(3000,3001,3002,3003)는 고분자매트릭스(200)의 외부면에 보호코팅층(300)을 더 구비할 수 있다. 상기 보호코팅층(300)은 고분자매트릭스의 표면부에 위치한 방열필러의 이탈을 방지하고, 표면에 가해지는 물리적 자극으로 인한 스크래치 등을 방지하며, 절연기능을 제공하여 절연 및 방열이 동시에 요구되는 전자장치 등에도 사용이 가능하도록 할 수 있다.

[166] 상기 보호코팅층(300)은 공지된 열경화성 고분자화합물 또는 열가소성 고분자화합물로 구현될 수 있다. 상기 열경화성 고분자화합물은 에폭시계, 우레탄계, 에스테르계 및 폴리이미드계 수지로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있다. 또한, 상기 열가소성 고분자화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 폴리에테르이미드(PEI) 및

폴리이미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.

[167] 상기 보호코팅층(300)은 두께가 0.1 ~ 1000 μm 일 수 있고, 보다 바람직하게는 0.1 ~ 100 μm 일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니며, 목적에 따라 변경하여 구현할 수 있다.

[168] 한편, 상기 보호코팅층(300)은 그래파이트 복합체(100) 및 금속지지층(600,601,602,603)을 통해 전도되는 열의 공기 중 방사를 방해하는 작용을 할 수 있다. 이에 보다 향상된 방열 및 외부 공기 중으로 열의 방사특성을 향상시키기 위하여 상기 보호코팅층(300)은 방열필러를 더 구비한 방열코팅층일 수 있다. 또한, 상기 보호코팅층(300)은 안료를 포함할 수 있다. 그래파이트 복합체(3000,3001,3002,3003)는 방열필러로 그래파이트 복합체를 포함함에 따라서 색상이 어둡거나 검은색에 가깝게 구현될 수 있고, 이 경우 색상문제로 일부 용도에서는 그래파이트 복합체 사용이 기피될 수 있다. 이에 상기 보호코팅층(300)은 목적하는 색상을 발현 시키는 공지된 안료를 더 포함할 수 있다.

[169]

[170] 상술한 본 발명의 제1구현예 및 제2구현예에 따른 그래파이트 복합체, 방열복합체는 전기·전자 부품으로 구현될 수 있다. 상기 전기·전자 부품은 전지분야, 자동차분야, 조명분야, 우주항공분야, 디스플레이 분야 등 각종 산업 전반에 사용되는 전기·전자 기기의 부품일 수 있고, 특히, 방열성능과 내구성이 동시에 요구되는 부품일 수 있다. 또한, 상기 부품에서 본 발명에 따른 방열복합체는 방열하우징, 방열지지부재, 방열회로기판, 히트싱크로써 채용될 수 있다. 다만, 본 발명에 따른 방열복합체가 사용되는 분야와, 구체적인 용도는 이에 제한되는 것은 아니다.

발명의 실시를 위한 형태

[171] 하기의 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하기로 하지만, 하기 실시예가 본 발명의 범위를 제한하는 것은 아니며, 이는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것으로 해석되어야 할 것이다.

[172] <실시예1>

[173] 평균입경이 300 μm 인 판상의 팽창흑연인 그래파이트와 니켈분말의 혼합비율을 1:19 중량비로 10분 동안 혼합하여 원료 분말을 준비하였다. 또한, 고주파 열플라즈마 장치에 센트럴 가스와 시스 가스로서 각각 30 lpm 및 50 lpm의 아르곤 가스를 주입하였다. 이후에 플라즈마 토치 전원으로 17 kW를 인가하여 고온의 열 플라즈마를 생성시킨 후 원료 분말을 주입하기 전 장비의 진공도를 500 torr로 유지하고, 플라즈마 발생 전극부의 분사노즐을 통해 준비된 원료분말을 고주파 열플라즈마 반응부 내부로 주입하였고, 그 내부에서는 그래파이트가 플라즈마에 의한 열적 손상 없이 이동하고, 니켈 분말만이

선택적인 기화과정을 거쳐 나노입자로 결정화되어 그래파이트와 결합하였다. 이렇게 결합된 그래파이트 및 니켈 나노입자의 결합체는 사이클론부에서 분리되어 이송배관을 통해 콜렉터의 필터에 흡착되었고, 필터에 흡착된 분말을 블로우 백 공정을 거쳐 수거부에서 포집되었다.

[174] 이후, 포집된 상기 결합체에 카테콜 아민층을 형성시키기 위하여, TBS(Tris buffer solution, 100mM)에 2mM 농도의 도파민을 용해시키고, 상기 용액 1L에 상기 결합체 5g을 섞어 상온, 대기 상태에서 2시간 교반하였다. 도파민이 니켈 나노입자와의 반응속도를 높이기 위하여 과요오드산나트륨(Sodium Periodate)을 도파민 중량의 10% 첨가하여 교반시켰다. 2시간 교반 후 여과(Filtering)를 통하여 미반응 물질을 제거하고, Di-water로 2회 세척 후 상온에서 건조하여 폴리도파민이 코팅된 그래파이트 복합체(이하, "GC"로 표기함)를 제조하였다. 제조된 그래파이트 복합체에서 그래파이트, 나노입자 및 폴리도파민의 중량%는 각각 94.95중량%, 5중량%, 0.05 중량%이었다. 또한, SEM 사진을 통해 확인된 나노입자의 평균입경은 32nm이었다.

[175] 준비된 그래파이트 복합체와 팽창흑연(이하 표 1 내지 3에서 'EG'로 표기함)을 1: 9 중량비로 혼합하여 그래파이트조성물을 제조한 뒤, 그래파이트 조성물과 열가소성 고분자인 폴리아미드-6를 중량비 1:1로 혼합 후 동방향 이축 압출기의 메인 호퍼 및 사이트 피더에 투입한 다음 압출기 배럴 온도 280°C 조건 하에서 용융하여 Strand 컷팅방법을 사용해 펠렛을 제조하고, 이후 열풍건조기에서 건조시켜 그래파이트 복합재용 마스터배치를 제조하였다.

[176] <실시예 2 ~ 18>

[177] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 표 1 내지 표 3과 같이 그래파이트 조성물을 변경하여 하기 표 1 내지 표 3과 같은 그래파이트 복합재용 마스터배치를 제조하였다. 이때, 표 1 내지 표 3에서 그래파이트 플레이크는 "GF"로 표기했고, 평균입경이 75 μ m인 것을 사용했으며, 구형 그래파이트는 "RG"로 표기했고, 평균입경이 40 μ m인 것을 사용했다.

[178] <비교예 1>

[179] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 그래파이트 조성물에 그래파이트를 투입하지 않고 그래파이트 복합체만 포함하여 그래파이트 복합재용 마스터배치를 제조하였다.

[180] <비교예 2>

[181] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 그래파이트 조성물의 그래파이트 대신에 평균입경이 330nm인 카본블랙을 동일함량으로 투입하여 그래파이트 복합재용 마스터배치를 제조하였다.

[182] <실험예>

[183] 실시예 1~ 18 및 비교예 1 ~ 2에서 제조된 마스터배치를 통상적인 사출장치에 투입시켜 사출물을 제조한 후 하기의 물성을 평가하여 그 결과를 표 1 내지 3에 나타내었다. 이때, 각 사출물인 시편의 크기와 형상은 하기와 같은 물성의

평가방법에 적합하도록 제조하였다.

[184] 1. 수평열전도도

[185] ASTM E1461에 의거하여 시편에 대한 수평 열전도도를 측정하였다.

[186] 2. 인장강도

[187] ASTM D638에 의거하여 시편에 대한 인장강도를 측정하였다.

[188] 3. 충격강도

[189] ASTM D256에 의거하여 충격강도를 측정하였다.

[190]

[191]

[192]

[193]

[194]

[195]

[196]

[197]

[198] [표1]

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	실시 예7
그라 파이 트 조성 물	GC: 그라파이트 중량비	1:9	1:14.7	1:17	1:24.5	1:26	1:3	1:1.2
	그라파이트 종류 및 혼합 중량비	EG	EG	EG	EG	EG	EG	EG
그라 파이 트 복합 재	PA-6: 그라파이트 조성물 중량비	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1
	수평열전도도(W/mK)	14.2	14.5	14.5	14.7	14.9	13.8	13.9
	인장강도(Kgf/ cm ²)	855	860	830	810	790	840	830
	충격강도(Kgf.c m/cm)	3.52	3.53	3.20	3.18	2.58	3.52	3.35

[199] (※ GC: 그라파이트 복합체, EG: 팽창흑연, PA-6: 폴리아미드-6)

[200] [표2]

		실시예 8	실시예 9	실시예 10	실시예 11	실시예 12	실시예 13	실시 예 14
그라파 이트 조성물	GC: 그라파이트 중량비	1:0.7	1:9	1:9	1:9	1:9	1:9	1:9
	그라파이트 종류 및 혼합 중량비	EG	GF	RF	EG+R G/1:8	EG+G F /1:8	EG+G F /1:13	EG+G F /1:15
그라파 이트 복합재	PA-6: 그라파이트 조성물 중량비	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1
	수평열전도도(W/mK)	14.2	13.20	8.30	9.3	14.8	14.5	13.7
	인장강도(Kgf/ cm ²)	790	820	670	710	840	855	832
	충격강도(Kgf.c m/cm)	2.71	2.93	3.62	3.45	3.69	3.60	3.49

[201] (※ GC: 그라파이트 복합체, EG: 팽창흑연, GF: 그라파이트 플레이크, RF: 구형 그라파이트, PA-6: 폴리아미드-6)

[202] [표3]

		실시예1	실시예1	실시예	실시예1	비교예1	비교예2
		5	6	17	8		
그래파이트 조성물	GC: 그래파이트 중량비	1:9	1:9	1:9	1:9	1:0	1:9
	그래파이트 종류 및 혼합 중량비	EG+GF /1:19.5	EG+GF /1:22	EG+GF /1:5.3	EG+GF /1:4	-	카본블랙
그래파이트 복합재	PA-6: 그래파이트 조성물 중량비	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1
	수평열전도도(W/mK)	13.8	13.5	14.7	14.3	14.0	3.3
	인장강도(Kgf/ cm ²)	830	785	807	780	789	580
	충격강도(Kgf.c m/cm)	3.30	3.05	3.48	3.10	2.40	3.80

[203] (※ GC: 그래파이트 복합체, EG: 팽창흑연, GF: 그래파이트 플레이크, PA-6: 폴리아미드-6)

[204]

[205] 표 1 내지 표 3에서 확인할 수 있듯이,

[206] 그래파이트 복합체만이 포함된 비교예1의 경우 그래파이트 복합체 이외에 다른 종류의 그래파이트를 구비한 실시예들에 비해 인장강도, 충격강도가 현저히 좋지 않은 것을 확인할 수 있다.

[207] 또한, 탄소소재이나 그래파이트가 아닌 카본블랙이 포함된 비교예2는 열전도도가 현저히 좋지 않음을 확인할 수 있다.

[208] 한편, 실시예 중에서도 그래파이트 중 팽창흑연이 포함된 실시예1이 그래파이트 플레이크를 포함한 실시예 9, 구형 그래파이트를 포함한 실시예 10에 대비해 열전도도 및 기계적강도 모두를 우수하게 발현시킴을 확인할 수 있고, 그래파이트 복합체와 팽창흑연의 조합에서 상승된 효과가 있음을 확인할 수 있다.

[209]

[210] <실시예 19>

[211] 평균입경이 300 μ m인 판상의 팽창흑연인 그래파이트와 니켈분말의 혼합비율을

1:19 중량비로 10분 동안 혼합하여 원료 분말을 준비하였다. 또한, 고주파 열플라즈마 장치에 센트럴 가스와 시스 가스로서 각각 30 lpm 및 50 lpm의 아르곤 가스를 주입하였다. 이후에 플라즈마 토치 전원으로 17 kW를 인가하여 고온의 열 플라즈마를 생성시킨 후 원료 분말을 주입하기 전 장비의 진공도를 500 torr로 유지하고, 플라즈마 발생 전극부의 분사노즐을 통해 준비된 원료분말을 고주파 열플라즈마 반응부 내부로 주입하였고, 그 내부에서는 그라파이트가 플라즈마에 의한 열적 손상 없이 이동하고, 니켈 분말만이 선택적인 기화과정을 거쳐 나노입자로 결정화되어 그라파이트와 결합하였다. 이렇게 결합된 그라파이트 복합체는 사이클론부에서 분리되어 이송배관을 통해 콜렉터의 필터에 흡착되었고, 필터에 흡착된 분말을 블로우 백 공정을 거쳐 수거부에서 포집되었다. 제조된 그라파이트 복합체에서 그라파이트와 나노입자는 중량%는 각각 94.98중량%, 5.02중량%이었다. 또한, SEM 사진을 통해 확인된 나노입자의 평균입경은 32nm이었다.

[212] 준비된 그라파이트 복합체에 대해 열가소성 고분자인 폴리아미드-6를 중량비 1:1로 혼합 후 동방향 이축 압출기의 메인 호퍼 및 사이트 피더에 투입한 다음 압출기 배럴 온도 280°C 조건 하에서 용융하여 Strand 커팅방법을 사용해 펠렛을 제조하고, 이후 열풍건조기에서 건조시켜 방열복합재용 마스터배치를 제조하였다.

[213] 제조된 마스터배치와, 금속지지층으로 가로 12cm, 세로 6cm, 두께가 1.5mm인 알루미늄판을 준비한 뒤 이를 통상의 사출장치를 이용해 용융된 마스터배치를 통해 형성되는 고분자 매트릭스가 두께 3mm로 금속지지층의 전면을 둘러싸도록 사출시켜 도 6과 같은 구조의 방열복합재를 제조하였다.

[214] <실시예 20>

[215] 실시예19와 동일하게 실시하여 제조하되, 제조된 그라파이트 복합체의 나노입자 상에 카테콜아민층을 더 형성시켜 그라파이트 복합체를 제조하였고, 이를 이용해 방열복합재를 제조하였다.

[216] 구체적으로 카테콜아민층이 형성된 그라파이트 복합체는 하기의 제조방법을 통해 제조되었다. 카테콜아민층을 더 형성시키기 위해 TBS(Tris buffer solution, 100mM)에 2mM 농도의 도파민을 용해시키고, 상기 용액 1L에 나노입자가 형성된 그라파이트 복합체 5g을 섞어 상온, 대기 상태에서 2시간 교반하였다. 도파민과 니켈 나노입자와의 반응속도를 높이기 위하여 과요오드산나트륨(Sodium Periodate)을 도파민 중량의 10% 첨가하여 교반시켰다. 2시간 교반 후 여과(Filtering)를 통하여 미반응 물질을 제거하고, Di-water로 2회 세척 후 상온에서 건조하여 폴리도파민이 코팅된 그라파이트 복합체를 제조하였다. 제조된 그라파이트 복합체에서 그라파이트, 나노입자 및 폴리도파민의 중량%는 각각 94.95중량%, 5중량%, 0.05 중량%이었다.

[217] <실시예 21 ~ 27>

[218] 실시예 20과 동일하게 실시하여 제조하되, 혼합원료 상 그라파이트와

니켈분말의 혼합비를 조절함을 통해 그라파이트 상에 형성된 나노입자의 평균입경을 하기 표 4와 같이 변경하여 하기 표 4와 같은 방열복합재를 제조하였다.

[219] <비교예3>

[220] 실시예 19와 동일하게 실시하되, 그라파이트에 나노입자를 형성시키지 않고 그라파이트만으로 마스터배치를 제조하고, 이를 통해 동일하게 하기 표 4와 같은 방열복합재를 제조하였다.

[221] <실험예2>

[222] 실시예 19 ~ 27 및 비교예 3에 따라 제조된 방열복합재에 대해 하기의 물성을 평가하여 하기 표 4에 나타내었다.

[223] 1. 계면 접합특성

[224] 시편에 대하여 1mm 간격이 되도록 나이프로 크로스 커팅을 했다. 이후 커팅된 면에 스카치테이프를 부착하고 60° 각도로 잡아당겨 고분자매트릭스가 박리되는 상태를 확인한다.

[225] 평가된 전체 면적 중 스카치테이프를 탈착한 후 시편의 표면에 박리된 고분자매트릭스의 면적을 계산하여 박리된 면적을 백분율로 나타냈다. 구체적으로 0%인 경우 박리가 없는 경우이며, 100%인 경우 모두 박리된 경우를 의미한다.

[226] 2. 내구성 평가

[227] 온도가 60°C, 상대습도가 90%인 챔버내 방열복합재를 배치시킨 뒤 2000시간 경과 후 방열복합재의 표면상태를 육안으로 평가하였다. 평가결과 고분자매트릭스의 크랙, 박리(들뜸) 유무를 확인하여 이상이 없는 경우 ○, 이상이 발생한 경우 ×로 나타내었다.

[228] [표4]

		실시 예19	실시 예20	실시 예21	실시 예22	실시 예23	실시 예24	실시 예25	실시 예26	비교 예3
그라 파이 트 복합 체	그라파이 트 평균입경 (μm)	300	300	300	300	300	300	300	300	300
	나노입자 평균입경 (nm)	32.3	32.3	50.0	63.2	69.7	10.5	6.7	4.4	0
	카테콜아 민층 형성유무	×	○	○	○	○	○	○	○	×
방열 복합 재	계면 접합력(%)	88.0	100	98.6	90.1	87.5	94.8	86.9	80.3	66.6
	내구성	○	○	○	○	×	○	○	×	×

[229] 표 4를 통해 확인할 수 있듯이,

[230] 그라파이트에 나노입자를 구비한 실시예 19는 단순 그라파이트에 대비하여 방열복합재에서 계면 접합력이 현저히 우수한 것을 확인할 수 있고, 이를 통해 나노입자가 이종재질인 알루미늄판과 고분자매트릭스 간 앵커로써 기능하고 있음을 알 수 있다.

[231] 또한, 나노입자만 형성된 그라파이트 복합체를 구비한 실시예 19에 대비하여 카테콜아민층까지 구비된 실시예 20의 그라파이트 복합체를 통한 방열복합재가 계면접합력에 있어서 현저한 효과를 발현함을 확인할 수 있다.

[232]

[233] 한편, 앵커로써 기능하는 나노입자의 크기가 본 발명의 바람직한 범위보다 작은 실시예 26은 계면접합력이 다른 실시예에 비해 저하되었고, 내구성 또한 좋지 않은 것을 확인할 수 있다.

[234] 또한, 나노입자의 크기가 바람직한 범위보다 큰 실시예 23의 경우 계면접합력의 저하 폭이 다소 적었으나, 내구성 평가결과 이상이 발생하였다. 이는 그라파이트 상에 형성된 나노입자의 입경 증가로 인해 형성되는 카테콜아민층의 양이 증가하고, 이로 인한 그라파이트 복합체 간 응집발생에 따른 고분자매트릭스 내 분산성 저하로 인한 결과로 예상되었다.

[235]

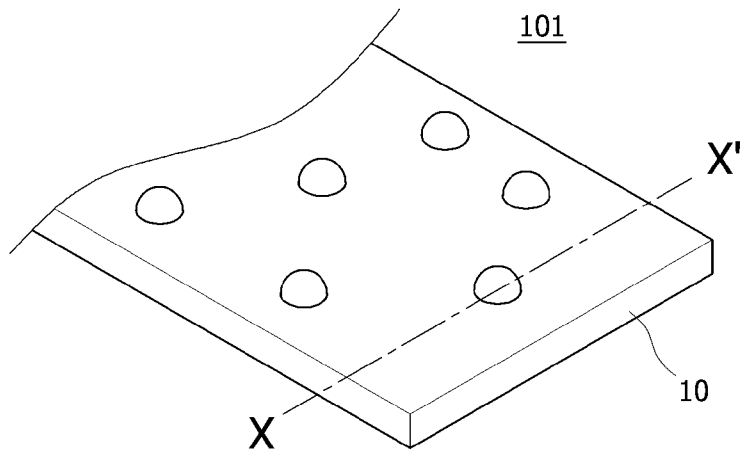
- [236] 이상에서 본 발명의 일 실시예에 대하여 설명하였으나, 본 발명의 사상은 본 명세서에 제시되는 실시 예에 제한되지 아니하며, 본 발명의 사상을 이해하는 당업자는 동일한 사상의 범위 내에서, 구성요소의 부가, 변경, 삭제, 추가 등에 의해서 다른 실시 예를 용이하게 제안할 수 있을 것이나, 이 또한 본 발명의 사상범위 내에 든다고 할 것이다.

청구범위

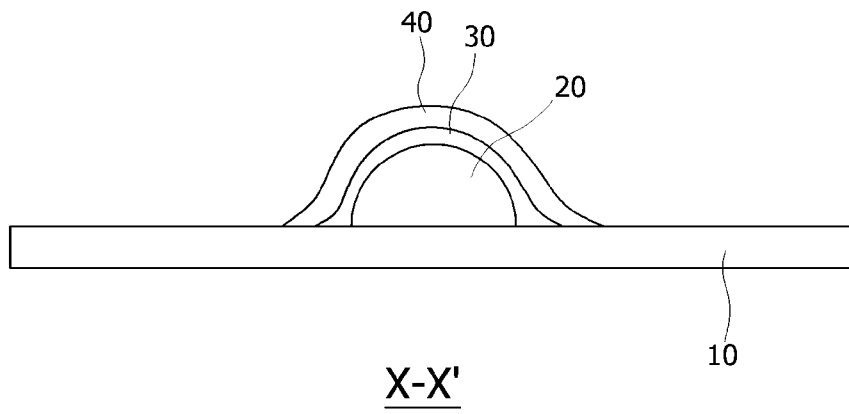
- [청구항 1] 표면에 나노입자가 그래파이트 상에 고정된 그래파이트 복합체; 및
 그래파이트 플레이크, 구형 그래파이트 및 팽창 그래파이트 중 적어도
 어느 하나의 그래파이트;를 포함하는 그래파이트 조성물.
- [청구항 2] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트 복합체는 적어도 상기 나노입자 상에 피복된
 카테콜아민층이 더 구비된 그래파이트 조성물.
- [청구항 3] 제2항에 있어서,
 상기 그래파이트 복합체는 적어도 상기 카테콜아민층에 피복된
 고분자층을 더 포함하는 그래파이트 조성물.
- [청구항 4] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트 복합체는 평균입경이 10 ~ 900 μm 인 그래파이트 조성물.
- [청구항 5] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트 플레이크는 평균입경이 10 μm ~ 1,000 μm 이며, 상기
 팽창흑연은 평균입경이 50 μm ~ 1,000 μm 이고, 상기 구형 그래파이트는
 평균입경이 10 μm ~ 100 μm 인 그래파이트 조성물.
- [청구항 6] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트는 팽창흑연인 그래파이트 조성물.
- [청구항 7] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트는 그래파이트 플레이크와 팽창흑연을 포함하며,
 상기 팽창흑연과 그래파이트 플레이크는 1:1 ~ 20 중량비로 포함되는
 그래파이트 조성물.
- [청구항 8] 제1항에 있어서,
 상기 그래파이트 복합체와 상기 그래파이트는 1: 1 ~ 25 중량비로
 구비되는 그래파이트 조성물.
- [청구항 9] 제7항에 있어서,
 상기 그래파이트는 그래파이트 플레이크와 팽창흑연을 포함하며,
 상기 팽창흑연과 그래파이트 플레이크는 1: 1 ~ 13 중량비로 포함되는
 그래파이트 조성물.
- [청구항 10] 제8항에 있어서,
 상기 그래파이트 복합체와 상기 그래파이트는 1: 1 ~ 15 중량비로
 구비되는 그래파이트 조성물.
- [청구항 11] 제1항에 따른 그래파이트 조성물; 및
 열가소성 고분자화합물;을 포함하는 그래파이트 복합체 제조용
 마스터배치.
- [청구항 12] 제11항에 있어서,
 상기 그래파이트 조성물은 마스터배치 전체중량 중 20 ~ 80 중량%로

- 구비되는 그라파이트 복합재 제조용 마스터배치.
- [청구항 13] 제11항에 있어서,
 상기 열가소성 고분자 화합물은 폴리아미드, 폴리에스테르, 폴리케톤, 액정고분자, 폴리올레핀, 폴리페닐렌설파이드(PPS), 폴리에테르에테르케톤(PEEK), 폴리페닐렌옥사이드(PPO), 폴리에테르술폰(PES), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 혼성 중합체(ABS), 폴리에테르이미드(PEI) 및 폴리이미드로 이루어진 군에서 선택된 1종의 화합물, 또는 2종 이상의 혼합물 또는 코폴리머인 그라파이트 복합재 제조용 마스터배치.
- [청구항 14] 열가소성 고분자화합물을 포함하여 성형된 고분자매트릭스; 및
 상기 고분자매트릭스에 분산된 제1항에 따른 그라파이트 조성물을 포함하는 방열필러;를 구비하는 그라파이트 복합재.
- [청구항 15] 제14항에 있어서,
 상기 고분자매트릭스의 외부면의 적어도 일부에는 보호코팅층이 더 구비되는 그라파이트 복합재.
- [청구항 16] 심부와 상기 심부를 둘러싸는 피복부를 형성하도록 열가소성 고분자화합물을 포함하여 성형된 고분자매트릭스;
 상기 심부 내부를 포함하여 분산되는 제1항에 따른 그라파이트 조성물을 포함하는 제1방열필러; 및
 상기 피복부 내부를 포함하여 분산된 안료;를 포함하는 그라파이트 복합재.
- [청구항 17] 제16항에 있어서,
 상기 피복부는 제2방열필러를 더 포함하는 그라파이트 복합재.
- [청구항 18] 제14항 내지 제17항 중 어느 한 항에 따른 그라파이트 복합재; 및
 상기 그라파이트 복합재의 고분자매트릭스와 적어도 하나의 계면을 형성하도록 구비되는 지지부재;를 포함하는 방열복합재.

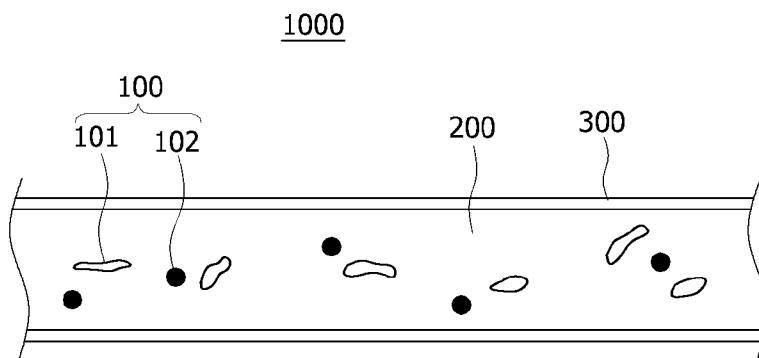
[도1a]



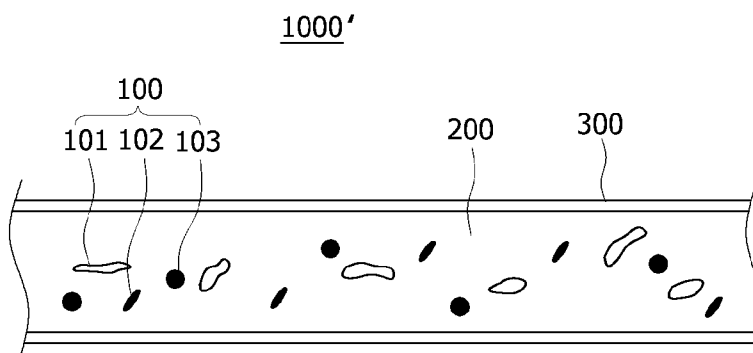
[도1b]



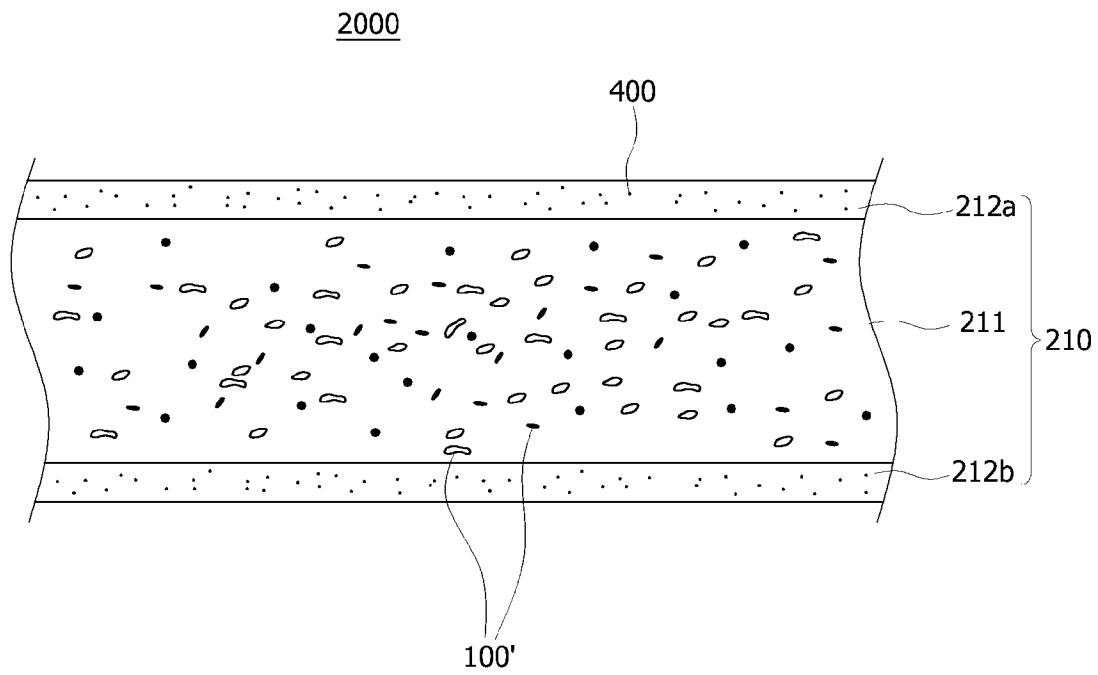
[도2]



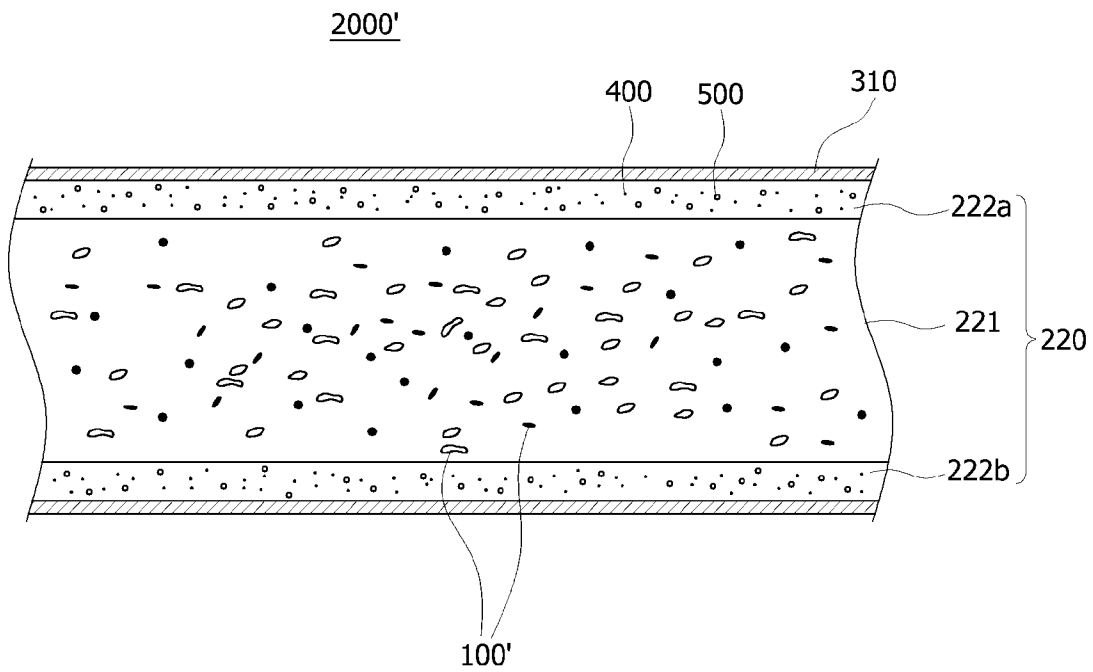
[도3]



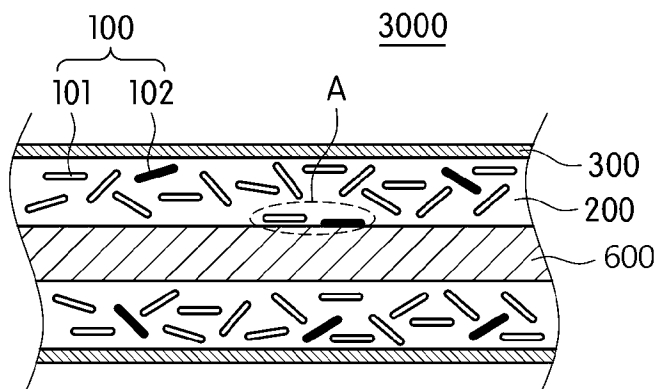
[도4]



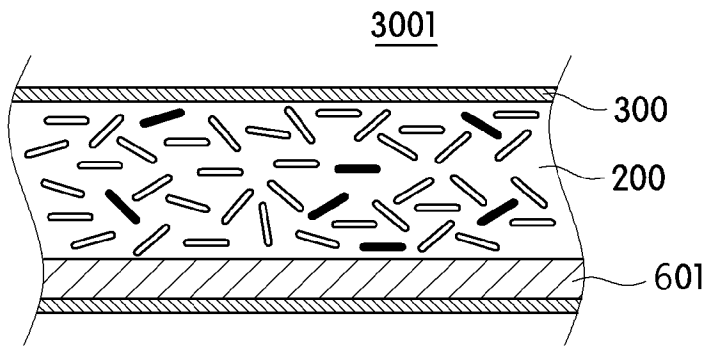
[도5]



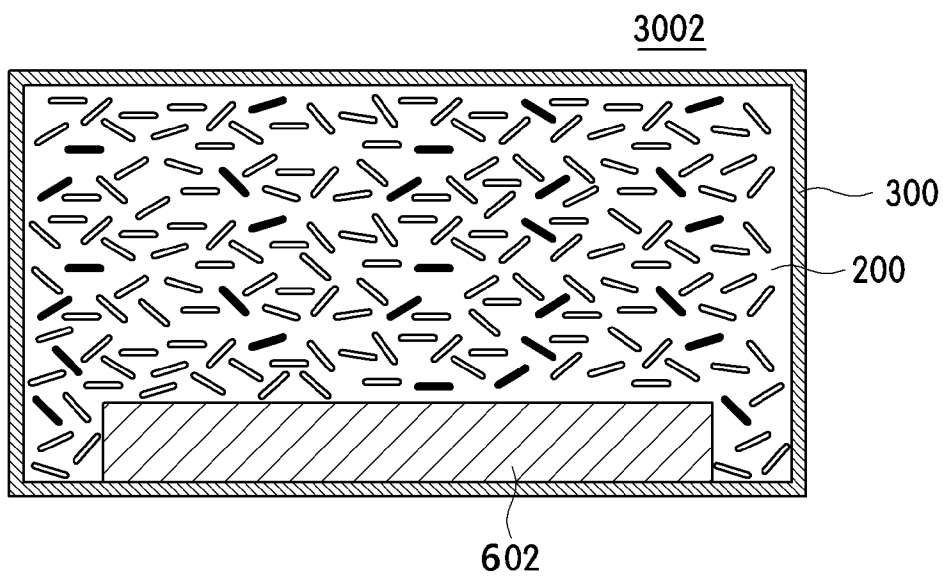
[도6]



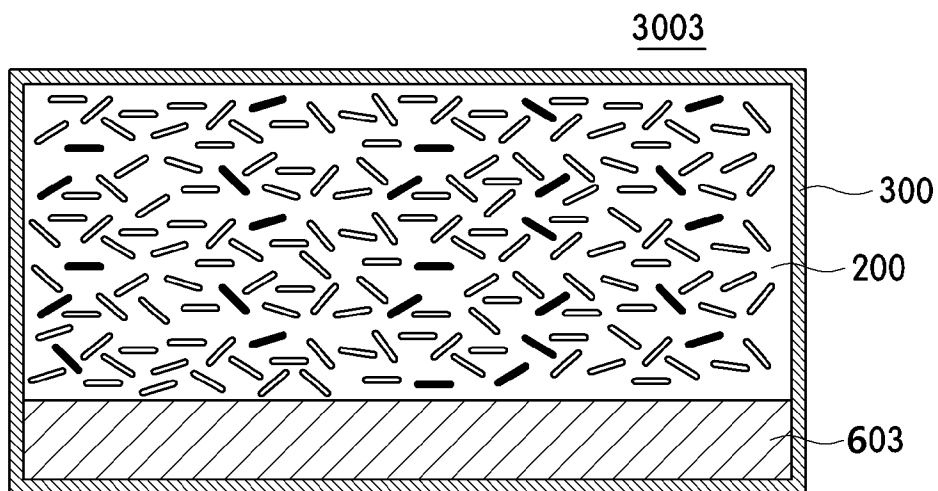
[도7]



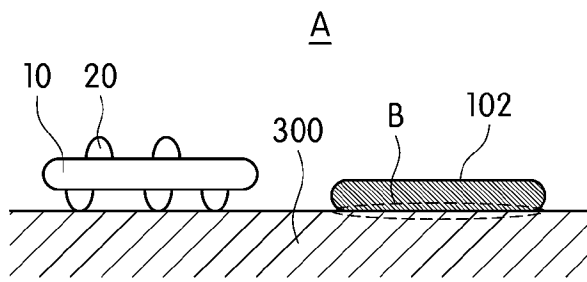
[도8]



[도9]



[도10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2018/004607

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08K 9/04(2006.01)i, C08K 3/04(2006.01)i, C08J 3/22(2006.01)i, C08L 75/04(2006.01)i, C08L 23/16(2006.01)i, C08L 23/26(2006.01)i, C08L 21/00(2006.01)i, H05K 7/20(2006.01)i, B32B 27/20(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08K 9/04; H01M 10/60; C08J 3/12; H01Q 1/38; E01C 11/24; H01L 33/64; E01C 13/08; C08K 3/04; C08J 3/22; C08L 75/04; C08L 23/16; C08L 23/26; C08L 21/00; H05K 7/20; B32B 27/20

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: graphite, catecholamine layer, polymer layer, expanded graphite, polymer matrix, dispersion, coating, pigment, heat radiation

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 10-2015-0110058 A (CHEORWON PLASMA RESEARCH INSTITUTE) 02 October 2015 See paragraphs [0010]-[0146]; and claims 1-22.	1-18
Y	KR 10-1679698 B1 (KOREA ELECTRONICS TECHNOLOGY INSTITUTE) 25 November 2016 See paragraphs [0007]-[0048]; and claims 1-9.	1-18
Y	KR 10-1247119 B1 (OH, Dong Hoon et al.) 02 April 2013 See paragraphs [0014]-[0069]; and claims 1-7.	11-13
Y	JP 4327227 B1 (OKU EN-TOUT-CAS CO., LTD.) 09 September 2009 See paragraphs [0017]-[0119]; and claims 1-12.	16,17
A	KR 10-1509853 B1 (HYUNDAI MOTOR COMPANY) 06 April 2015 See the entire document.	1-18



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

23 AUGUST 2018 (23.08.2018)

Date of mailing of the international search report

23 AUGUST 2018 (23.08.2018)

Name and mailing address of the ISA/KR



Korean Intellectual Property Office
Government Complex Daejeon Building 4, 189, Cheongsu-ro, Seo-gu,
Daejeon, 35208, Republic of Korea

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2018/004607

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2015-0110058 A	02/10/2015	CN 106459494 A US 2017-0107355 A1 US 9908996 B2 WO 2015-147501 A1	22/02/2017 20/04/2017 06/03/2018 01/10/2015
KR 10-1679698 B1	25/11/2016	NONE	
KR 10-1247119 B1	02/04/2013	NONE	
JP 4327227 B1	19/06/2009	JP 2009-293326 A	17/12/2009
KR 10-1509853 B1	06/04/2015	KR 10-2013-0091211 A US 8465864 B1	16/08/2013 18/06/2013

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C08K 9/04(2006.01)i, C08K 3/04(2006.01)i, C08J 3/22(2006.01)i, C08L 75/04(2006.01)i, C08L 23/16(2006.01)i, C08L 23/26(2006.01)i, C08L 21/00(2006.01)i, H05K 7/20(2006.01)i, B32B 27/20(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C08K 9/04; H01M 10/60; C08J 3/12; H01Q 1/38; E01C 11/24; H01L 33/64; E01C 13/08; C08K 3/04; C08J 3/22; C08L 75/04; C08L 23/16; C08L 23/26; C08L 21/00; H05K 7/20; B32B 27/20

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 그래파이트, 케테폴아민층, 고분자층, 팽창흑연, 고분자매트릭스, 분산, 피복, 안료, 방열

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	KR 10-2015-0110058 A (재단법인 철원플라즈마 산업기술연구원) 2015.10.02 단락 [0010]-[0146]; 및 청구항 1-22항 참조.	1-18
Y	KR 10-1679698 B1 (전자부품연구원) 2016.11.25 단락 [0007]-[0048]; 및 청구항 1-9 참조.	1-18
Y	KR 10-1247119 B1 (오동훈 등) 2013.04.02 단락 [0014]-[0069]; 및 청구항 1-7항 참조.	11-13
Y	JP 4327227 B1 (OKU EN-TOUT-CAS CO., LTD.) 2009.09.09 단락 [0017]-[0119]; 및 청구항 1-12항 참조.	16, 17
A	KR 10-1509853 B1 (현대자동차주식회사) 2015.04.06 전체 문헌 참조.	1-18

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일

2018년 08월 23일 (23.08.2018)

국제조사보고서 발송일

2018년 08월 23일 (23.08.2018)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



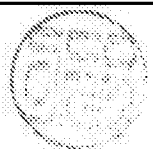
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

이동욱

전화번호 +82-42-481-8163



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2015-0110058 A	2015/10/02	CN 106459494 A US 2017-0107355 A1 US 9908996 B2 WO 2015-147501 A1	2017/02/22 2017/04/20 2018/03/06 2015/10/01
KR 10-1679698 B1	2016/11/25	없음	
KR 10-1247119 B1	2013/04/02	없음	
JP 4327227 B1	2009/06/19	JP 2009-293326 A	2009/12/17
KR 10-1509853 B1	2015/04/06	KR 10-2013-0091211 A US 8465864 B1	2013/08/16 2013/06/18