

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2024년 6월 27일 (27.06.2024)



(10) 국제공개번호
WO 2024/136152 A1

(51) 국제특허분류:

B29C 48/40 (2019.01) *B29C 48/80* (2019.01)
B29C 70/06 (2006.01) *B29C 48/68* (2019.01)
B29C 48/00 (2019.01) *B29K 71/00* (2006.01)
B29C 48/285 (2019.01)

(21) 국제출원번호: PCT/KR2023/018548

(22) 국제출원일: 2023년 11월 17일 (17.11.2023)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:
10-2022-0181396 2022년 12월 22일 (22.12.2022) KR

(71) 출원인: 한화솔루션(주) (HANWHA SOLUTIONS CORPORATION) [KR/KR]; 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR).

(72) 발명자: 박명철 (PARK, Myungchul); 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR). 조신제 (CHO, Shin-je); 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR). 이정민 (LEE, Jeong Min); 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR). 이상우 (LEE, Sang Woo); 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR). 임종성 (YIM, Jongseong); 04541 서울특별시 중구 청계천로 86, Seoul (KR).

(74) 대리인: 특허법인 이룸리온 (ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM); 06575

서울특별시 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

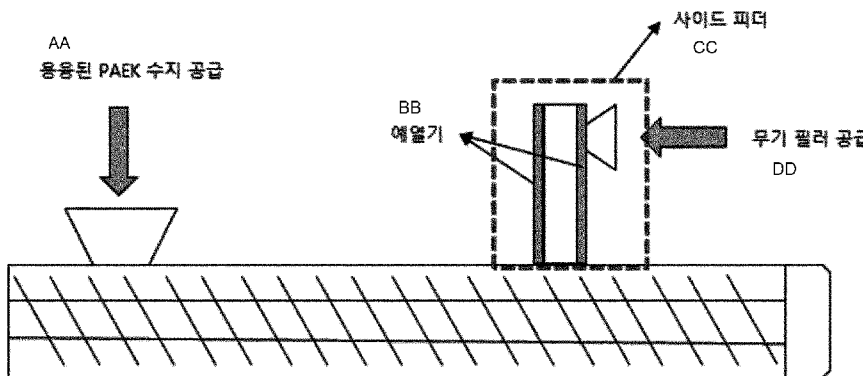
(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, 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))

(54) Title: METHOD FOR COMPOUNDING SUPER ENGINEERING PLASTIC RESIN, AND SUPER ENGINEERING PLASTIC PRODUCED THEREBY

(54) 발명의 명칭: 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법 및 이 방법으로 제조한 슈퍼엔지니어링 플라스틱



AA ... Feed in molten PAEK resin
BB ... Preheater
CC ... Side feeder
DD ... Feed in inorganic filler

(57) Abstract: The present invention relates to a method for compounding a polymer resin, and more specifically to: a method for compounding a super engineering plastic resin comprising a high content of an inorganic filler; and super engineering plastic produced thereby.

(57) 요약서: 본 발명은 고분자 수지의 컴파운딩 방법에 관한 것으로서, 좀 더 구체적으로는 무기 필러를 고함량으로 포함하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지를 컴파운딩하는 방법 및 이 방법으로 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱에 관한 것이다.

WO 2024/136152 A1

명세서

발명의 명칭: 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법 및 이 방법으로 제조한 슈퍼엔지니어링 플라스틱 기술분야

- [1] 본 발명은 무기필러를 고함량으로 포함하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지를 효율적으로 컴파운딩하는 방법 및 이 방법으로 제조한 슈퍼엔지니어링 플라스틱에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 공업용 플라스틱에 비교하면 강도, 탄성 및 내열성 등이 우수하며, 금속이나 세라믹스에 가까운 특성을 지닌 슈퍼 엔지니어링 플라스틱에 대한 수요가 증가하고 있으며, 이러한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱은 경량으로 뛰어난 역학 특성을 가지면서 다양한 분야의 소재로 사용되고 있으며, 특정 용도에서 요구되는 물성 향상을 위해서 다양한 필러를 적용하며, 일례를 들면, 강화 섬유를 이용한 수지로 제조한 성형품은 경량으로 뛰어난 역학 특성을 갖기 때문에, 스포츠 용품 용도, 항공 우주 용도 및 일반 산업용도 등에 넓게 이용되고 있다.
- [3] 이와 같이 슈퍼 엔지니어링 플라스틱은 내열성이 우수한 소재로서 유리전이온도, 용융온도 등이 매우 높은 소재인데, 여기에 강도, 내열성을 높이고, 특수한 물성을 부여하기 위해서 다양한 필러를 압출기를 이용하여 컴파운딩시키는데, 컴파운딩 시, 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 가공 온도 범위가 매우 높고, 결정성 소재이기 때문에, 필러를 짧은 시간 안에 다량으로 공급되는 경우, 내부에서 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 급냉이 발생하여 압출기의 토크가 올라가고, 압출기 설비에 무리가 발생하며, 급냉으로 인해 용융된 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지와 필러간의 함침성 및 혼련성이 크게 감소하는 문제가 발생하는 문제가 있었다.
- [4] 용융온도(T_m)가 높고 가공온도가 용융온도 보다 조금밖에 높지 않은 PEKK (poly ether ketone ketone)의 경우, 특히 겨울철 또는 혹한기에 컴파운딩 가공시, 이축압출기의 사이드 공급기(side feeder)로 통해 섬유(fiber)가 공급되어 컴파운딩이 될 때 이미 주변 온도 수준으로 냉각된 섬유의 공급으로 인해 압출기 내부의 온도(에너지)는 낮아지고(뺏기고), 이로 인해 섬유 함침성이 낮아지고 압출기 토크, 수지 압력 상승, 이로 인해 섬유는 저항을 받아 단사되어 최종 컴파운딩 제품의 섬유 길이는 짧아지게 되며, 이로 인해, 기계적 물성이 감소하게 되는 문제가 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [5] 본 발명은 이축 스크류 압출기를 이용하여 슈퍼 엔지니어링 수지와 무기필러를 함침, 혼련시 발생하는 슈퍼 엔지니어링 수지의 급냉 방지를 통해 무기필러를 고

함량으로 포함하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조할 수 있는 컴파운딩 방법을 제공하고자 한다.

과제 해결 수단

- [6] 상술한 과제를 해결하기 위한 본 발명은 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법은, 이축 스크류 압출기(twin screw extruder)를 이용한 섬유 강화 폴리 아릴에테르케톤(PAEK, poly aryl ether ketone) 플라스틱 제조에 있어서, 상기 이축 스크류 압출기는 예열기가 장착된 사이드 공급기(side feeder)가 구비되어 있고, 상기 예열기는 사이드 공급기의 배럴 외부를 감싸면서 형성된 전기 히터기(electric heater) 또는 열매체유(heating medium oil)기로 구성되고, 이축 스크류 압출기의 수지 공급부로 용융된 PAEK 플라스틱 수지를 공급하며, 상기 사이드 공급기로 무기 필러를 공급하여 용융된 PAEK 플라스틱 수지와 무기 필러가 혼합된 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조한다.
- [7] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 PAEK 플라스틱 수지는 PEEK(poly ether ether ketone) 수지, PEKK(poly ether ketone ketone) 수지 및 PEK(poly ether ketone) 수지 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [8] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 무기 필러는 GCF(glass chopped fiber), CCF(carbon chopped fiber) 및 아라미드 섬유 중에서 선택된 1종 이상의 무기섬유계 필러; 및 탈크; 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [9] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 무기섬유계 필러는, 에폭시 수지 에멀전(Epoxy resin emulsion), 폴리우레탄 필름 형성제(Polyurethane film former), 에폭시실란 커플링제(epoxy silane coupling agent), 아미노실란 커플링제(aminosilane coupling agent), 비이온성 윤제(non-ionic lubricant), 아세트산(acetic acid), 붕산(boric acid) 및 물 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 사이징제(sizing agent)로 코팅처리된 것일 수 있다.
- [10] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지는, 상기 무기 필러 5 ~ 60 중량% 및 나머지 잔량의 상기 PAEK 플라스틱 수지를 포함할 수 있다.
- [11] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 사이드 공급기로부터 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도는 50 ~ 200°C일 수 있다.
- [12] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 사이드 공급기로부터 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도와 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도는 하기 방정식 1을 만족할 수 있다.
- [13] [방정식 1]
- [14] $210^{\circ}\text{C} \leq A-B \leq 280^{\circ}\text{C}$
- [15] 방정식 1에서 A는 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도(°C)이고, B는 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도(°C)이다.

- [16] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 이축 스크류 압출기의 공급부로 공급된 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도는 350 ~ 400°C일 수 있다.
- [17] 본 발명의 다른 목적은 앞서 설명한 컴파운딩 방법으로 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지를 포함하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제공하는데 있다.
- [18] 본 발명의 바람직한 일실시예로서, 상기 슈퍼 엔지니어링 플라스틱은 펠릿 및/또는 칩 형태일 수 있다.

발명의 효과

- [19] 본 발명의 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법은 계절 및 주변 온도 변화에 영향을 받지 않으며, 컴파운딩 공정상 발생할 수 있는 이축 스크류 압출기 등의 설비의 무리를 방지하면서도, 무기필러를 고함량으로 포함하는 품질이 우수한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [20] 도 1은 본 발명 섬유 강화 PAEK 수지 및 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 제조에 사용된 이축 스크류 압출기의 개략도를 나타낸 것이다.
- [21] 도 2는 실시예 1에서 사용한 무기 필러인 GCF(glass chopped filler)의 TGA(Thermogravimetric analysis) 측정 데이터이다.
- [22] 도 3은 실시예 2에서 사용한 무기 필러인 CCF(carbon chopped filler)의 TGA 측정 데이터이다.

발명의 실시를 위한 형태

- [23] 이하, 본 발명의 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법은 도 1에 개략도로 나타낸 바와 같이, 무기필러가 공급되는 사이드 공급기(side feeder)가 구비된 이축 스크류 압출기를 이용하여 컴파운딩을 수행한다. 기존 이축 스크류 압출기는 가공온도가 높고, 용융온도와 가공 온도 차이가 크지 않은 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 압착 가공, 컴파운딩 가공시, 사이드 공급기를 통해 과량의 무기 첨가물이 공급(feeding)될 경우, 용융 수지가 급냉되어 가공성, 기계적 강도, 품질 저하가 발생할 수 있는데, 이와 달리 본 발명의 이축 스크류 압출기는 히팅(heating)이 가능한 사이드 공급기가 구비된 이축 스크류 압출기를 사용함으로써, 이러한 문제점을 방지할 수 있다.
- [24] 즉, 본 발명의 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지 컴파운딩 방법은, 이축 스크류 압출기(twin screw extruder)를 이용한 섬유 강화 폴리아릴에테르케톤(PAEK, poly aryl ether ketone) 플라스틱 제조하는 방법으로서, 상기 이축 스크류 압출기는 예열기가 장착된 사이드 공급기(side feeder)가 구비되어 있다.
- [25] 그리고, 상기 예열기는 사이드 공급기의 배럴 외부를 감싸면서 형성된 전기 히터기(electric heater) 또는 열매체유(heating medium oil)기로 구성된다.
- [26] 상기 이축 스크류 압출기의 수지 공급부로 용융된 PAEK 플라스틱 수지를 공급되면, 스크류에 의해 사이드 공급기 방향으로 용융된 PAEK 플라스틱 수지가 이동하게 되며, 사이드 공급기로부터 무기 필러가 공급되어, 용융된 PAEK 플라스

틱 수지와 함침 및 혼련되어 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조한 후, 이를 스트랜드(strand)로 압출 및 펠렛화하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조할 수 있다.

- [27] 상기 수지 공급부 되는 상기 PAEK 플라스틱 수지는 PEEK(poly ether ether ketone) 수지, PEKK(poly ether ketone ketone) 수지 및 PEK(poly ether ketone) 수지 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [28] 그리고, 이축 스크류 압출기의 공급부로 공급된 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도는 300°C 이상, 바람직하게는 350 ~ 400°C일 수 있다.
- [29] 상기 무기 필러는 GCF(glass chopped fiber), CCF(carbon chopped fiber), 및 아라미드 섬유 중에서 선택된 1종 이상의 무기섬유계 필러; 및 탈크; 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있으며, 바람직하게는 무기섬유계 필러를 포함할 수 있다.
- [30] 그리고, 상기 무기섬유계 필러는, 에폭시 수지 에멀전(Epoxy resin emulsion), 폴리우레탄 필름 형성제(Polyurethane film former), 에폭시실란 커플링제(epoxy silane coupling agent), 아미노실란 커플링제(aminosilane coupling agent), 비이온성 윤제(non-ionic lubricant), 아세트산(acetic acid), 붕산(boric acid) 및 물로 코팅처리된 것일 수 있다.
- [31] 상기 무기 필러의 온도는 50 ~ 250°C, 바람직하게는 100 ~ 200°C, 더욱 바람직하게는 120 ~ 150°C일 수 있다.
- [32] 상기 사이드 공급기의 배럴은 예열기에 의해 예열 처리되며, 사이드 공급기로부터 이축 스크류 압출기에 공급되는 무기 필러의 온도가 하기 방정식 1을 만족하도록 사이드 공급기의 배럴을 예열 처리할 수 있다.
- [33] [방정식 1]
- [34] $210^{\circ}\text{C} \leq A-B \leq 280^{\circ}\text{C}$, 바람직하게는 $230^{\circ}\text{C} \leq A-B \leq 280^{\circ}\text{C}$
- [35] 방정식 1에서 A는 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도(°C)이고, B는 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도(°C)이다. 이때, A-B의 온도값이 210°C 미만이면 무기 필러에 처리된 사이징제 성분이 열분해 되어 무기 필러로부터 사이징제가 손실되는 문제가 있을 수 있고, A-B의 온도값이 280°C를 초과하면 PAEK 플라스틱 수지와 무기 필러의 온도차가 너무 크고, 낮은 온도의 섬유 다발이 사이드 피더를 통해 공급되어서 압출기 실린더 내부의 PAEK 플라스틱 수지를 냉각시키게 되고, 그 결과 섬유화 수지간의 함침성을 낮추어 복합재료의 기계적강도를 저하시키는 문제가 있을 수 있다.
- [36] 그리고, 이축 스크류 압출기의 공급부로 공급된 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 상기 방정식 1을 만족하는 바람직한 온도는 350 ~ 400°C일 수 있다.
- [37] 위와 같이 이축 스크류 압출기에 공급된 무기 필러는 용융된 PAEK 플라스틱 수지에 함침 및 혼련시켜서 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조할 수 있다.
- [38] 그리고, 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지는 압출기에 의해 스트랜드(strand)로 압출된 후, 특정 형태의 섬유 강화 PAEK 플라스틱, 즉, 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하게 된다.

- [39] 상기 특정 형태는 펠렛(pallet), 칩(chip), 그레놀(granule) 또는 파우더(powder) 형태일 수 있으며, 바람직하게는 펠렛화 처리되어 펠렛 형태의 섬유 강화 PAEK 플라스틱을 제조할 수 있다.
- [40] 상기 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지는, 상기 무기 필러 5 ~ 60 중량% 및 나머지 잔량의 상기 PAEK 플라스틱 수지를 포함할 수 있으며, 바람직하게는 무기 필러 10 ~ 40중량% 및 나머지 잔량의 상기 PAEK 플라스틱 수지를 포함할 수 있다.
- [41]
- [42] 이하에서는 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.
- [43] [실시예]
- [44] 실시예 1: 섬유 강화 PAEK 플라스틱(슈퍼 엔지니어링 플라스틱)의 제조
- [45] 사이드 공급기가 구비된 이축 스크류 압출기(스크류 직경 25mm, L/D = 44)를 이용하여 다음과 같은 조건으로 섬유 강화 PEKK 플라스틱을 제조하였으며, 이축 스크류 압출기 사진은 도 1의 A에 나타내었다. 상기 사이드 공급기의 배럴 외부를 감싸면서 형성된 전기 세라믹히터(electric heater)가 구비되어 있다
- [46] T/I 비율이 80/20인 PEKK 수지를 중합하여 파우더(Powder)를 제조한 후 이축 압출기의 실린더 온도를 호퍼에서 다이까지 순차적으로 330~390°C로 상승시켜 압출 준비를 한 후, 이를 이축압출기의 수지 공급부에 투입하였으며, 압출기의 스크류 회전 속도는 300 rpm으로 하였다. 레진 공급은 7kg/hr의 속도로 중량 감속식 공급장치(Loss in weight feeder)를 이용하여 정량 공급하였고, 150°C로 예열된 사이드 공급기를 통해 에폭시 실란 커플링제(사이즈제)로 사이징 처리된 GCF(Glass chopped fiber, Jushi사의 상품명 ECS13-03)를 공급하였다. 상기 GCF의 TGA 분석 데이터를 도 2에 나타내었으며, 사이드 공급기의 배럴은 150°C가 유지되도록 예열기에 의해 열처리하여, 연결 공급부로 이축 스크류 압출기에 공급되는 GCF의 온도가 120°C가 되도록 예열 처리하였다.
- [47] 그리고, 수지 공급부로 공급되는 PAEK 플라스틱 수지의 공급량 및 사이드 공급기에 공급되는 무기 필러 공급량은 3kg/hr으로 공급하여, 함침 및 혼련 공정을 수행하여, 무기 필러인 사이징 처리된 GCF 30 중량% 및 나머지 잔량의 PEKK 플라스틱 수지를 포함하는 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조한 다음, 이를 압출하여 스트랜드로 제조한 후, 펠렛화하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하였다.
- [48]
- [49] 실시예 2
- [50] 상기 실시예 1과 동일한 방법 및 조건으로 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조한 다음, 이를 압출하여 스트랜드로 제조한 후, 펠렛화하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하되, 상기 GCF 대신 폴리우레탄 필름 형성제(Polyurethane film former)로 사이징 처리된 CCF(carbon chopped fiber, 상품명: Aceca 6PU)를 사용하

여, 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지 및 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하였다. 그리고, 상기 CCF의 TGA 분석 데이터를 도 3에 나타내었다.

[51]

[52] **비교예 1**

[53] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 사이징 처리된 GCF를 사이드 공급기로 공급하여 GCF 30 중량% 및 나머지 잔량의 PEKK 플라스틱 수지를 포함하는 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 포함하는 펠렛화된 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하되, 사이드 공급기를 열처리하지 않고서 사이징 처리된 GCF를 공급하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하였다.

[54]

[55] **비교예 2**

[56] 상기 실시예 2와 동일한 방법으로 사이징 처리된 CCF를 사이드 공급기로 공급하여 CCF 30 중량% 및 나머지 잔량의 PEKK 플라스틱 수지를 포함하는 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 포함하는 펠렛화된 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하되, 사이드 공급기를 열처리하지 않고서 사이징 처리된 CCF를 공급하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하였다.

[57]

[58] **실험예 1: 슈퍼 엔지니어링 플라스틱의 물성 측정**

[59] 상기 실시예 1 ~ 2 및 비교예 1 ~ 2에서 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱의 인장강도(Tensile strength), 굽힘강도(Flexural strength) 및 충격강도(Notched Impact strength)를 측정하였고, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

[60] 이때, 인장강도는 ISO 527, 굽힘강도는 ISO 178, 충격강도는 ISO 179에 의거하여 측정하였다.

[61] [표1]

구분	사이드 피더 열처리/ 무기 필러 함량	인장강도 (Mpa)	굽힘강도 (Mpa)	충격강도 (kJ/m ²)
비교예 1	No heating / G CF 30 중량%	197	283	3.4
실시예 1	150°C 예열처리 /GCF 30 중량%	210	290	4.5
비교예 2	No heating /C CF 30 중량%	265	371	4.2
실시예 2	150°C 예열처리 /CCF 30 중량%	280	380	5.0

[62] 상기 표 1의 실시예 및 비교예에서 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱의 물성 측정 결과를 살펴보면, 사이드 피더를 통해 무기 필러 공급시 열처리하여 공급하여

제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱인 실시예 1 및 실시예 2는 비교예 1 및 비교예 2 각각과 비교할 때, 인장강도, 굽힘강도 및 충격강도 모두 전반적으로 우수한 물성 상승 효과 증대가 있음을 확인할 수 있었다.

[63]

[64] 실시예 3 ~ 4 및 비교예 3 ~ 4

[65] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 제조하되, 사이드 공급기의 예열 온도를 달리하여, 공급되는 무기 필러의 온도를 하기 표 2와 같이 다르게 공급하여 슈퍼 엔지니어링 플라스틱을 각각 제조하였다. 이때, 이축 스크류 압출기 내에서 무기 필러와 혼합시 PEKK 수지의 온도는 약 375°C였다.

[66]

[67] 실험예 2 : 슈퍼 엔지니어링 플라스틱의 물성 측정

[68] 상기 실시예 3 ~ 4 및 비교예 3 ~ 4에서 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱의 물성을 실험예 1과 동일한 방법으로 측정하였고, 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

[69] [표2]

구분	무기 필러 온도/ 무기 필러 함량	PEKK 수지 온도	인장강도 (Mpa)	굽힘강도 (Mpa)	충격강도 (kJ/m ²)
실시예 1	120°C / GCF 30 중량%	380°C	210	290	4.5
실시예 3	100°C / GCF 30 중량%		207	280	4.2
실시예 4	160°C /GCF 30 중량%		213	284	4.3
비교예 3	70°C /GCF 30 중량%		199	284	3.5
비교예 4	210°C / GCF 30 중량%		173	238	3.0

[70] 상기 표 2의 물성 측정 결과를 살펴보면, 실시예 3은 비교예 3와 비교하여 상대적으로 인장강도 및 충격강도가 물성이 훨씬 우수했으며, 실시예 4는 비교예 4와 비교할 때, 전반적으로 물성 측정 결과가 높은 결과를 보였다. PEKK 수지와 온도차가 280°C를 초과한 비교예 3의 경우, 낮은 온도의 섬유 다발이 사이드 피더를 통해 공급되어 압출기 실린더 내부의 PEKK 용융 수지를 냉각시켜 섬유화 수지 간의 함침성을 낮추어 복합재료의 기계적강도를 낮춘 결과를 보인 것으로 판단된다. 또한, PEKK 수지와 온도차가 200°C 미만인 비교예 4의 경우, 무기필러에 처리된 사이징제 성분이 열분해 되어 무기 필러인 GCF가 표면에 손실이 발생하였고, 그 결과 제조된 PEKK 복합재료의 물성을 감소시킨 것으로 판단된다.

청구범위

- [청구항 1] 이축 스크류 압출기(twin screw extruder)를 이용한 섬유 강화 폴리아릴에테르케톤(PAEK, poly aryl ether ketone) 플라스틱 제조에 있어서, 상기 이축 스크류 압출기는 예열기가 장착된 사이드 공급기(side feeder)가 구비되어 있고, 상기 예열기는 사이드 공급기의 배럴 외부를 감싸면서 형성된 전기 히터기(electric heater) 또는 열매체유(heating medium oil)기로 구성되고, 이축 스크류 압출기의 수지 공급부로 용융된 PAEK 플라스틱 수지를 공급하며, 상기 사이드 공급기로 무기 필러를 공급하여 용융된 PAEK 플라스틱 수지와 무기 필러가 혼합된 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지를 제조하는 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.
- [청구항 2] 제1항에 있어서, 상기 PAEK 플라스틱 수지는 PEEK(poly ether ether ketone) 수지, PEKK(poly ether ketone ketone) 수지 및 PEK(poly ether ketone) 수지 중에서 선택된 1종 이상을 포함하고, 상기 무기 필러는 GCF(glass chopped fiber), CCF(carbon chopped fiber) 및 아라미드 섬유 중에서 선택된 1종 이상의 무기섬유계 필러; 및 탈크; 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.
- [청구항 3] 제2항에 있어서, 상기 무기섬유계 필러는, 에폭시 수지 에멀전(Epoxy resin emulsion), 폴리우레탄 필름 형성제(Polyurethane film former), 에폭시실란 커플링제(epoxy silane coupling agent), 아미노실란 커플링제(aminosilane coupling agent), 비이온성 윤제(non-ionic lubricant), 아세트산(acetic acid), 붕산(boric acid) 및 물 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 사이징제(sizing agent)로 코팅처리된 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.
- [청구항 4] 제1항에 있어서, 상기 섬유 강화 PAEK 플라스틱 수지는, 상기 무기 필러 5 ~ 60 중량% 및 나머지 잔량의 상기 PAEK 플라스틱 수지를 포함하는 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.
- [청구항 5] 제1항에 있어서, 상기 사이드 공급기로부터 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도는 50 ~ 200°C인 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.
- [청구항 6] 제5항에 있어서, 사이드 공급기로부터 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도와 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도는 하기 방정식 1을 만족하는 것을 특징으로 하는 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지의 컴파운딩 방법.

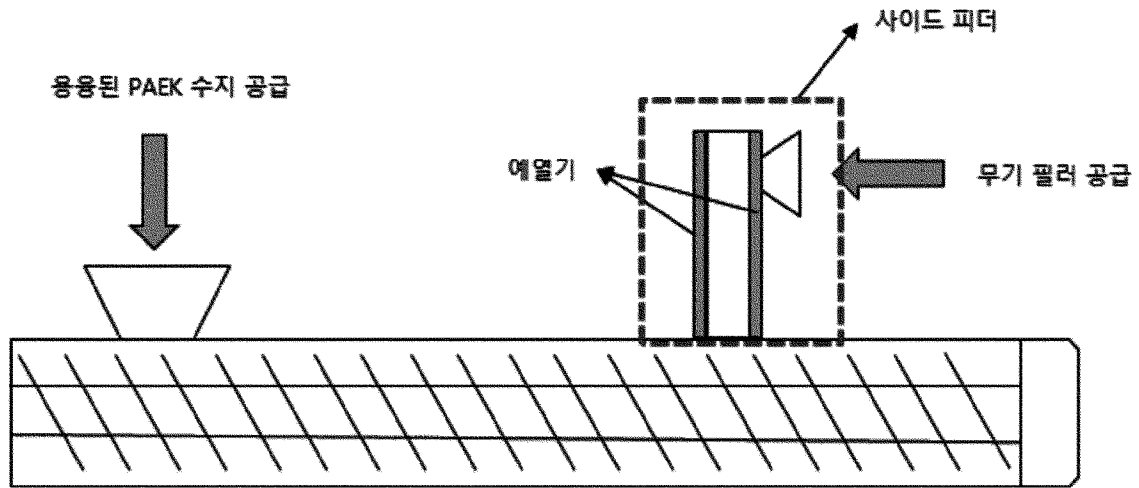
[방정식 1]

$$210^{\circ}\text{C} \leq A-B \leq 280^{\circ}\text{C}$$

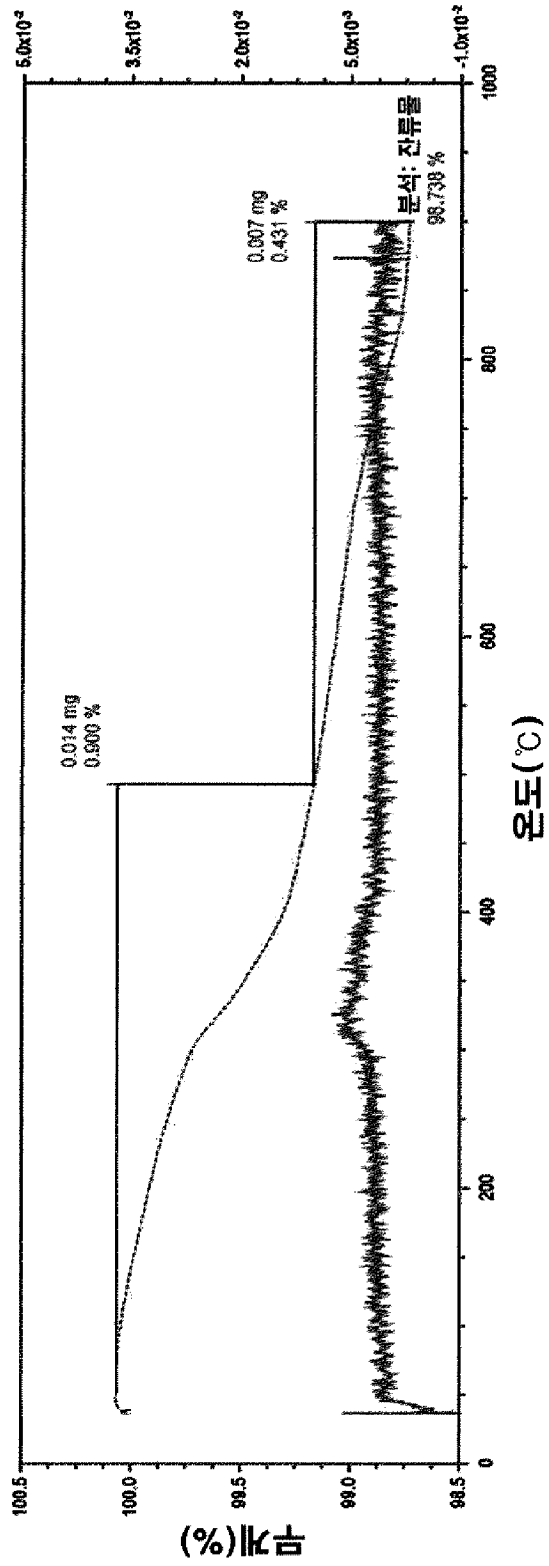
방정식 1에서 A는 용융된 PAEK 플라스틱 수지의 온도($^{\circ}\text{C}$)이고, B는 이축 스크류 압출기로 공급되는 무기 필러의 온도($^{\circ}\text{C}$)이다.

[청구항 7] 제1항 내지 제6항 중에서 선택된 어느 한 항의 컴파운딩 방법으로 제조한 슈퍼 엔지니어링 플라스틱 수지를 포함하는 것을 특징으로 하는 슈퍼엔지니어링 플라스틱.

[도1]

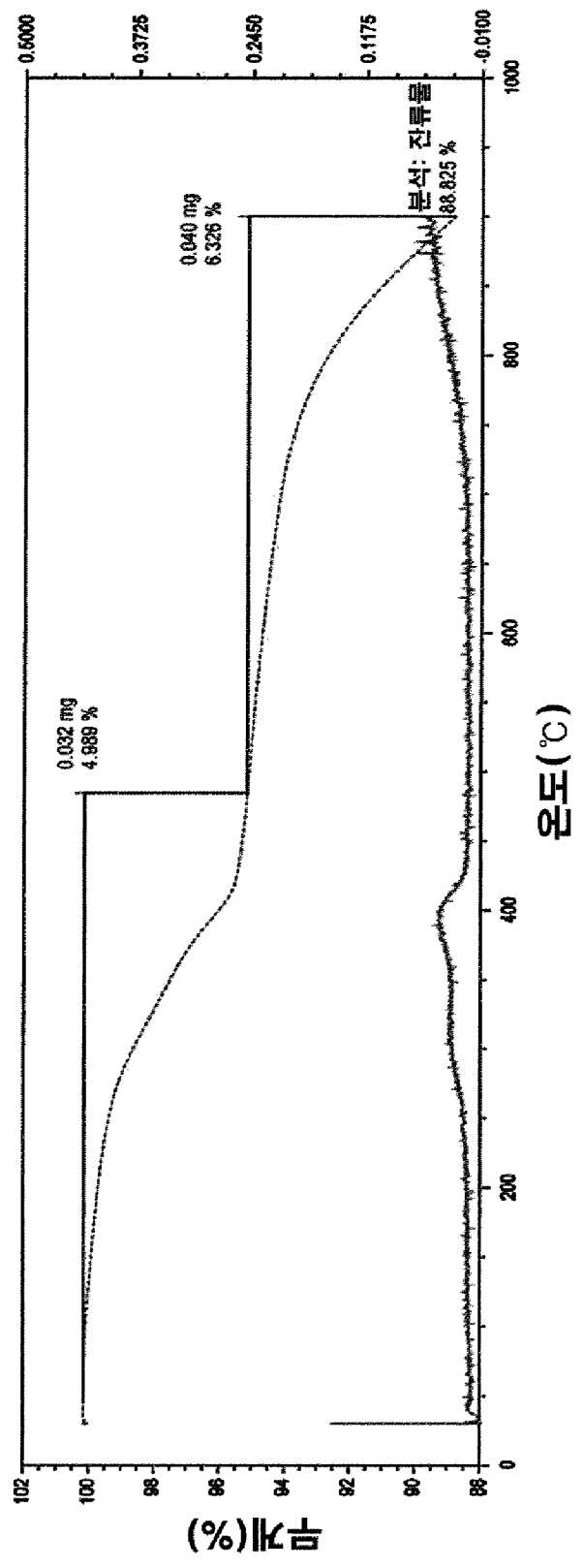


[도2]

무게변화량 $d(\text{무게})/d(\text{온도})$ (%/°C)

[도3]

무게변화량 d(무게)/d(온도) (%/°C)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2023/018548**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

B29C 48/40(2019.01)i; **B29C 70/06**(2006.01)i; **B29C 48/00**(2019.01)i; **B29C 48/285**(2019.01)i; **B29C 48/80**(2019.01)i;
B29C 48/68(2019.01)i; B29K 71/00(2006.01)n

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)

B29C 48/40(2019.01); B29B 7/06(2006.01); B29B 7/88(2006.01); B29C 47/00(2006.01); B29C 47/66(2006.01);
 B29C 47/76(2006.01); B29C 64/106(2017.01); B29C 64/314(2017.01); C08K 7/02(2006.01)

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: 폴리아릴에테르케톤(polyaryletherketone, PAEK), 압출기(extruder), 고분자
 (polymer), 필러(filler), 가열(heating)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	CN 101502987 A (WANG, G.) 12 August 2009 (2009-08-12) See claims 1-5; page 8; and figure 1.	1-7
Y	KR 10-2017-0077189 A (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 05 July 2017 (2017-07-05) See paragraph [0033]; and figure 1.	1-7
A	CN 110303675 A (XI AN JIAOTONG UNIVERSITY) 08 October 2019 (2019-10-08) See entire document.	1-7
A	US 6793847 B2 (MAEDA, M. et al.) 21 September 2004 (2004-09-21) See entire document.	1-7
A	KR 10-1542834 B1 (YOO, Tae Wook et al.) 07 August 2015 (2015-08-07) See entire document.	1-7



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
 “D” document cited by the applicant in the international application
 “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

28 February 2024

Date of mailing of the international search report

28 February 2024

Name and mailing address of the ISA/KR

**Korean Intellectual Property Office
 Government Complex-Daejeon Building 4, 189 Cheongsaro, Seo-gu, Daejeon 35208**

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2023/018548

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
CN	101502987	A	12 August 2009	None		
KR	10-2017-0077189	A	05 July 2017	BR	112017008785 A2	26 December 2017
				CA	2965841 A1	06 May 2016
				CN	107207781 A	26 September 2017
				EP	3212706 A1	06 September 2017
				EP	3212706 A4	06 June 2018
				EP	3212706 B1	02 September 2020
				ES	2828676 T3	27 May 2021
				JP	2018-501326 A	18 January 2018
				JP	6667518 B2	18 March 2020
				MX	2017005391 A	16 August 2017
				US	10400091 B2	03 September 2019
				US	2017-0321038 A1	09 November 2017
				WO	2016-065614 A1	06 May 2016
CN	110303675	A	08 October 2019	None		
US	6793847	B2	21 September 2004	CN	1174082 C	03 November 2004
				CN	1317542 A	17 October 2001
				DE	10116473 A1	11 October 2001
				JP	2001-288342 A	16 October 2001
				KR	10-0723278 B1	30 May 2007
				KR	10-2001-0095259 A	03 November 2001
				TW	526234 B	01 April 2003
				US	2002-0017631 A1	14 February 2002
KR	10-1542834	B1	07 August 2015	None		

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

B29C 48/40(2019.01)i; **B29C 70/06**(2006.01)i; **B29C 48/00**(2019.01)i; **B29C 48/285**(2019.01)i; **B29C 48/80**(2019.01)i;
B29C 48/68(2019.01)i; B29K 71/00(2006.01)n

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

B29C 48/40(2019.01); B29B 7/06(2006.01); B29B 7/88(2006.01); B29C 47/00(2006.01); B29C 47/66(2006.01);
B29C 47/76(2006.01); B29C 64/106(2017.01); B29C 64/314(2017.01); C08K 7/02(2006.01)

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: 폴리아릴에테르케톤(polyaryletherketone, PAEK), 압출기(extruder), 고분자(polymer), 필러(filler), 가열(heating)

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	CN 101502987 A (WANG, G.) 2009.08.12 청구항 1-5; 페이지 8; 도면 1	1-7
Y	KR 10-2017-0077189 A (쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니) 2017.07.05 단락 [0033]; 도면 1	1-7
A	CN 110303675 A (XI'AN JIAOTONG UNIVERSITY) 2019.10.08 전문	1-7
A	US 6793847 B2 (MAEDA, M. 등) 2004.09.21 전문	1-7
A	KR 10-1542834 B1 (유태욱 등) 2015.08.07 전문	1-7

☐ 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

“D” 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌

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

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

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

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

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

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

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

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일

2024년02월28일(28.02.2024)

국제조사보고서 발송일

2024년02월28일(28.02.2024)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소

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

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

허주형

전화번호 +82-42-481-5373

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
CN 101502987 A	2009/08/12	없음	
KR 10-2017-0077189 A	2017/07/05	BR 112017008785 A2	2017/12/26
		CA 2965841 A1	2016/05/06
		CN 107207781 A	2017/09/26
		EP 3212706 A1	2017/09/06
		EP 3212706 A4	2018/06/06
		EP 3212706 B1	2020/09/02
		ES 2828676 T3	2021/05/27
		JP 2018-501326 A	2018/01/18
		JP 6667518 B2	2020/03/18
		MX 2017005391 A	2017/08/16
		US 10400091 B2	2019/09/03
		US 2017-0321038 A1	2017/11/09
		WO 2016-065614 A1	2016/05/06
CN 110303675 A	2019/10/08	없음	
US 6793847 B2	2004/09/21	CN 1174082 C	2004/11/03
		CN 1317542 A	2001/10/17
		DE 10116473 A1	2001/10/11
		JP 2001-288342 A	2001/10/16
		KR 10-0723278 B1	2007/05/30
		KR 10-2001-0095259 A	2001/11/03
		TW 526234 B	2003/04/01
		US 2002-0017631 A1	2002/02/14
KR 10-1542834 B1	2015/08/07	없음	