



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2016-0022868
(43) 공개일자 2016년03월02일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08K 9/02 (2006.01) C08J 5/00 (2006.01)
C08K 3/38 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08K 9/02 (2013.01)
C08J 5/00 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2016-7001013
(22) 출원일자(국제) 2014년06월18일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2016년01월14일
(86) 국제출원번호 PCT/EP2014/062800
(87) 국제공개번호 WO 2014/202652
국제공개일자 2014년12월24일
(30) 우선권주장
13172868.5 2013년06월19일
유럽특허청(EPO)(EP)

(71) 출원인
쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박
스 33427 쓰리엠 센터
(72) 발명자
위벨 크리스나
독일 87437 발터호펜 제틀러스트라세 11
카이저 아르민
독일 87474 부셴베르크 루드비히-가이거-스트라세
1
김머만 요한나
독일 23552 뤼벡 바케니츠마우어 90
(74) 대리인
양영준, 조윤성, 김영

전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 발명의 명칭 중합체/질화붕소 배합물의 열가소성 가공에 의해 제조되는 구성 부품, 그러한 구성 부품을 제조하기 위한 중합체/질화붕소 배합물 및 이의 용도

(57) 요약

본 발명은, 적어도 하나의 부분에서 3 mm 이하의 벽 두께를 갖는, 열가소성 가공에 의해 제조되는 구성 부품으로서, 구성 부품은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함하는, 구성 부품에 관한 것이다. 본 발명은 게다가 그러한 구성 부품을 제조하기 위한 중합체/질화붕소 배합물에 관한 것이다. 본 발명은 게다가 냉각될 구성 부품 또는 조립체로부터의 방열을 위한 그러한 구성 부품의 용도에 관한 것이다.

(52) CPC특허분류

C08L 101/00 (2013.01)

C08K 2003/382 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

적어도 하나의 부분에서 3 mm 이하의 벽 두께를 갖는 구성 부품으로서, 구성 부품은 중합체/질화붕소 배합물의 열가소성 가공에 의해 제조되고, 중합체/질화붕소 배합물은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체(agglomerate)를 포함하는, 구성 부품.

청구항 2

제1항에 있어서, 구성 부품의 평면 통과 열전도율(through-plane thermal conductivity)은 1 W/m*K 이상, 바람직하게는 1.2 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.5 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 1.8 W/m*K 이상이고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형상의 사출 성형된 샘플에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 구성 부품의 평면 내 열전도율(in-plane thermal conductivity)은 1.5 W/m*K 이상, 바람직하게는 1.8 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 2.2 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 2.7 W/m*K 이상이고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형상의 사출 성형된 샘플에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.

청구항 4

제2항 및/또는 제3항에 있어서, 평면 통과 열전도율에 대한 평면 내 열전도율의 이방성 비는 1.5 이상 4 이하, 바람직하게는 1.5 이상 3.5 이하, 더욱 바람직하게는 1.5 이상 3.0 이하, 및 특히 바람직하게는 1.5 이상 2.5 이하인, 구성 부품.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 질화붕소 응집체의 비율은 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 5 부피% 이상, 바람직하게는 10 부피% 이상, 더욱 바람직하게는 20 부피% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 부피% 이상인, 구성 부품.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 질화붕소 응집체는, 하나 이상의 질화물 및/또는 산질화물을 포함하는 무기 결합제 상에 의해 서로 연결되는 소판-형상(platelet-shaped)의 육방정 질화붕소 일차 입자를 포함하는, 구성 부품.

청구항 7

제6항에 있어서, 질화붕소 응집체의 무기 결합제 상은 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si_3N_4), 또는/및 질화붕소 (BN), 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄, 및/또는 질화규소, 더욱 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄, 및 특히 바람직하게는 질화알루미늄을 포함하는, 구성 부품.

청구항 8

제6항 또는 제7항에 있어서, 질화붕소 응집체는 각각의 경우에 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로 1 중량% 이상, 바람직하게는 5 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 10 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 20 중량% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 중량% 이상의 결합제 상 비율을 갖고/갖거나, 질화붕소 응집체의 중형비는 1.0 내지 1.8, 바람직하게는 1.0 내지 1.5인, 구성 부품.

청구항 9

제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, 질화붕소 응집체는, 플레이크형(flake-like) 질화붕소 응집체를 형

성하도록 서로 응집되는 소관-형상의 육방정 일차 질화붕소 입자를 포함하는, 구성 부품.

청구항 10

제9항에 있어서, 비늘형(scale-like) 질화붕소 응집체의 텍스처 지수(texture index)는 2.0 초과, 바람직하게는 2.5 이상, 더욱 바람직하게는 3.0 이상, 특히 바람직하게는 3.5 이상이고/이거나,

비늘형 질화붕소 응집체의 두께는 500 μm 이하, 바람직하게는 200 μm 이하, 더욱 바람직하게는 100 μm 이하, 더욱 바람직하게는 70 μm 이하, 더욱 바람직하게는 50 μm 이하, 및 특히 바람직하게는 35 μm 이하이고/이거나, 비늘형 질화붕소 응집체의 종횡비는 1 초과, 및 바람직하게는 2 이상, 더욱 바람직하게는 3 이상, 더욱 바람직하게는 5 이상, 및 특히 바람직하게는 10 이상인, 구성 부품.

청구항 11

제9항 또는 제10항에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체는 무기 결합제 상을 포함하는, 구성 부품.

청구항 12

제11항에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체는 각각의 경우에 비늘형 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로 1% 이상, 바람직하게는 5% 이상, 더욱 바람직하게는 10% 이상, 더욱 바람직하게는 20% 이상, 및 특히 바람직하게는 30% 이상의 결합제 상 비율을 갖는, 구성 부품.

청구항 13

제11항 또는 제12항에 있어서, 결합제 상은 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si_3N_4), 또는/및 질화붕소 (BN), 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄, 및/또는 질화규소, 더욱 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄, 및 특히 바람직하게는 질화알루미늄을 포함하는, 구성 부품.

청구항 14

제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 있어서, 열전도율을 증가시키는, 질화붕소와 상이한 하나 이상의 충전제를 포함하는, 구성 부품.

청구항 15

제14항에 있어서, 질화붕소와 상이한 충전제는, 바람직하게는 알루미늄, 규소, 티타늄, 구리, 철, 및 청동 분말, 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는 금속 분말이거나; 또는 질화붕소와 상이한 충전제는 흑연, 팽창된 흑연, 또는 카본 블랙 - 팽창된 흑연이 특히 바람직함 - 의 형태의 탄소이거나; 또는 질화붕소와 상이한 충전제는, 바람직하게는 산화알루미늄, 산화마그네슘, 질화알루미늄, 이산화규소, 탄화규소, 질화규소, 및 이들의 혼합물 - 산화알루미늄, 산화마그네슘, 및/또는 질화알루미늄이 특히 바람직함 - 을 포함하는 군으로부터 선택되는 산화물, 질화물, 또는 탄화물이거나; 또는 질화붕소와 상이한 충전제는 광물 충전제이며, 바람직하게는 알루미늄실리케이트, 알루미늄 실리케이트, 마그네슘 실리케이트 ($2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$), 마그네슘 알루미늄네이트 ($\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$), 브루사이트(brucite) (수산화마그네슘, $\text{Mg}(\text{OH})_2$), 석영, 크리스토팔라이트(cristobalite), 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는, 구성 부품.

청구항 16

제14항 또는 제15항에 있어서, 질화붕소 응집체 및 질화붕소와 상이한 열전도성 충전제의 총 비율은 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 20 부피% 이상, 또는 바람직하게는 30 부피% 이상인, 구성 부품.

청구항 17

제1항 내지 제16항 중 어느 한 항에 있어서, 구성 부품의 벽 두께는 구성 부품의 적어도 하나의 부분에서 2 mm 이하인, 구성 부품.

청구항 18

제1항 내지 제17항 중 어느 한 항에 따른 구성 부품을 제조하기 위한 중합체/질화붕소 배합물로서, 중합체/질화붕소 배합물은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함하는, 중합체/질화붕소 배합물.

청구항 19

냉각될 구성 부품 또는 조립체로부터의, 바람직하게는 전자 구성 부품 또는 조립체로부터의 방열을 위한, 제1항 내지 제17항 중 어느 한 항에 따른 구성 부품의 용도.

발명의 설명

발명의 내용

- [0001] 본 발명은, 높은 평면 통과 열전도율(through-plane thermal conductivity)을 갖는 안정한 질화붕소 응집체(agglomerate)를 사용하여 중합체 배합물의 열가소성 가공에 의해 제조되는 구성 부품, 그러한 구성 부품을 제조하기 위한 중합체/질화붕소 배합물, 및 방열을 위한 그러한 구성 부품의 용도에 관한 것이다.
- [0002] 열가소성 가공가능한 플라스틱은 매우 다양한 응용에서 사용된다. 그러한 목적을 위해, 베이스 중합체의 특성은 추가 성분과의 배합에 의해서 종종 변경되며 그에 의해 각각의 응용에 맞추어진다.
- [0003] 예를 들어, 유기 충전제, 광물 충전제, 세라믹 충전제, 유리질 충전제, 및 금속성 충전제가, 중합체 매트릭스와 배합하기 위한 추가 성분으로서 사용될 수 있다. 추가 성분은, 예를 들어, 기계적 또는 전기적 특성, 열팽창계수, 또는 밀도를 변경하기 위해, 또는 열전도율을 증가시키기 위해 사용될 수 있다.
- [0004] 배합 동안, 중합체 및 추가 성분으로 이루어진 혼합 재료가 형성되는데, 이는 전형적으로 과립의 형태로 축적되며, 형상화 공정에서 추가로 가공된다. 구성 부품을 형성하기 위한 형상화는 바람직하게는 사출 성형에 의해 수행된다.
- [0005] 열전도성 중합체-기반 혼합 재료를 제조하기 위해서, 종종 단지 불량한 열전도성의 열가소성 매트릭스에 열전도성 충전제가 도입된다. 육방정 질화붕소는, 소판-형상(platelet-shaped)의 입자 모폴로지(morphology)를 갖는 고도로 열전도성인 충전제이며, 이는 열전도성 중합체/질화붕소 혼합 재료 (중합체/질화붕소 배합물)를 제조하는 데 사용될 수 있다.
- [0006] 열가소성 가공가능한 중합체를 충전제와 배합할 때, 압출기가 일반적으로 사용된다. 예를 들어, 스크루가 재료를 수송하는 것 외에도 추가의 기능을 하는 이축 압출기가 사용된다. 각각의 응용에 따라, 상이한 실시 형태로 이송 요소, 혼합 요소, 예를 들어 혼련 블록(kneading block)과 같은 전단 요소, 및 역류(backflow) 요소가 압출기 내의 상이한 구역에서 사용될 수 있다. 혼합 요소 및 전단 요소는 중합체 용융물과 충전제의 양호한 혼합 및 균질화를 보장한다.
- [0007] 충전제는 주 호퍼(main hopper)를 통해 중합체와 함께 첨가될 수 있지만 측면 공급기(side feeder)를 통해 또한 첨가될 수 있다. 충전제를 측면 공급기를 통해 첨가하는 것은, 충전제가 전단에 민감한 경우에 특히 중요하다. 중합체 과립은 주 공급기를 통해 압출기의 공급 구역 내로 투입되고, 후속하여 고압 및 강한 전단 하에서 용융된다. 전단-민감성 충전제는 측면 공급기를 통해 이미 용융된 충전제에 첨가된다.
- [0008] 전단에 덜 민감한 충전제는 추가적인 측면 공급 동안 또는 중합체와 함께 주 공급 동안 더 이른 시점에 이미 추가적인 측면 공급기를 통해 첨가될 수 있다. 전단에 덜 민감한 충전제, 또는 예를 들어 안료와 같이 완전히 균질화되어야 하는 충전제는 압출기에 더 오래 남아 있으며, 첨가된 지점으로부터, 압출기 내의 하류 균질화 및 전단 영역 전체를 통과한다.
- [0009] 예를 들어 스크루 속도 및 온도와 같은 선택된 배합 파라미터에 따라, 전단-민감성 충전제는 분해 또는 부분적인 분해를 겪을 수 있다.
- [0010] 압출기의 끝에서, 배합물은 스트랜드(strand) 형태의 중합체 용융물로서 노즐을 통해 압출기를 빠져나온다. 스트랜드가 냉각 및 응고된 후에, 제립기(granulator)로 배합물 과립을 제조하는데, 배합물 과립은 성형 공정에서 추가 가공하고자 하는 것이다.
- [0011] 충전되지 않은 중합체 과립을 위한 그리고 또한 중합체 및 충전제로 이루어진 배합물 과립을 위한 한 가지 가능한 형상화 공정은 사출 성형이다. 중합체 과립 또는 배합물 과립은 사출 성형기에서 재용융되고 고압 하에 주

형 내에 채워진다. 여기에서, 중합체 용융물 또는 배합물 용융물이 응고되고, 사출 성형된 구성 부품이 배출될 수 있다.

[0012] 사출 성형에서는, 형상화와 관련하여 설계가 매우 자유로우며, 수많은 기능을 할 수 있는 복잡한 구성 부품이 사출 성형될 수 있다. 충전제를 사용함으로써, 중합체는 각각의 응용 및 수행할 기능에 적합화될 수 있다.

[0013] 열전도성 중합체/질화붕소 배합물의 제조 및 구성 부품으로의 그의 가공에 있어서, 다수의 영향 요인이 열전도율 결과에 중대한 영향을 주는 것으로 나타났다. 이러한 영향 요인에는 배합, 형상화, 샘플의 기하학적 구조, 샘플 드로잉(drawing) 및 사용되는 측정 방법이 포함된다.

[0014] 배합 동안, 예를 들어, 공동 혼련기(co-kneading machine) (부스(Buss) 혼련기), 단축 압출기 및 이축 압출기가 사용될 수 있다. 거친 배합 또는 온화한 배합을 위한 조정은 기계 설계 및/또는 공정 파라미터를 통해 이루어질 수 있다. 상대적으로 거친 배합으로 조정하기 위해서는, 분산 요소 및 예를 들어, 혼련 블록과 같은 전단 요소 둘 모두를 사용하는 것이 가능하고; 더 온화한 배합으로 조정하기 위해서는, 예를 들어 혼련 블록이 전적으로 분배될 수 있다. 더 높은 스크루 속도는 배합물 및 배합물 내의 충전제의 비교적 더 강한 전단을 야기하는 반면, 더 낮은 스크루 속도는 배합물 및 배합물 내의 충전제의 비교적 더 약한 전단을 야기한다.

[0015] 중합체를 질화붕소 분말, 예를 들어 분무-건조된 질화붕소 분말과 배합하여 중합체/질화붕소 배합물을 형성할 때, 30 부피% 질화붕소를 폴리아미드 (PA 6)에 첨가하는 경우, 충전제의 강한 혼합 및 전단과 양호한 분산에 의한 거친 배합은 배합물의 비교적 양호한 기계적 특성을 야기하는 한편, 열전도율이 비교적 더 낮은 것으로 나타났다. 반대로, 낮은 전단 및 더 불량한 분산에 의한 온화한 배합은 비교적 더 우수한 열전도율 및 더 불량한 기계적 특성을 갖는 배합물을 야기한다.

[0016] 후속하는 형상화가 또한 열전도율 결과에 영향을 준다. 거친 배합에 의해 제조된 중합체/질화붕소 배합물의 샘플이 열간 프레스링(hot pressing)에 의해 제조되는 경우, 사출 성형에 의해 동일한 중합체/질화붕소 배합물로부터 제조된 인장 시험 바아에 대한 것보다 평면 통과 열전도율이 40% 더 높다. 열간 프레스링된 샘플의 평면 통과 열전도율 값은 2 mm의 얇은 사출 성형 플레이트에서 측정된 것보다 최대 100% 더 높다. 온화한 배합에 의해 제조된 중합체/질화붕소 배합물을 사용하여 사출 성형에 의해서 두께가 2 mm인 얇은 플레이트가 제조되는 경우, 거친 배합에 의해 제조된 배합물로부터의 사출 성형된 2 mm 플레이트에서보다 평면 통과 열전도율이 최대 15% 더 높다.

[0017] 게다가 샘플의 기하학적 구조가 또한 열전도율 결과에 영향을 준다. 두께가 4 mm인 사출 성형된 인장 바아에 대해 측정된 평면 통과 열전도율은, 사출 성형된 2 mm 두께의 플레이트에 대해 측정된 평면 통과 열전도율보다 최대 50% 더 높다.

[0018] 사출 성형에 있어서, 샘플 드로잉의 유형이 또한 열전도율 결과에 영향을 준다. 예를 들어, 거친 배합 및 2 mm의 얇은 플레이트의 사출 성형에 있어서, 열전도율은 게이트 부근, 샘플 중심, 및 게이트로부터 먼 곳에서 크게 상이할 수 있는 것으로 나타났다. 예를 들어, 고충전 배합물에서의 열전도율은 샘플 드로잉 위치에 따라 20%만큼 차이가 날 수 있다. 거친 배합 및 인장 시험 바아의 사출 성형에 있어서, 제1 샘플 숄더(sample shoulder) 직후 게이트 부근에서 취해진 샘플의 열전도율은 제2 샘플 숄더 전에 게이트로부터 먼 곳에서 취해진 샘플과 10%만큼 차이가 날 수 있다.

[0019] 마지막으로, 측정 방법이 또한 평면 통과 열전도율 결과에 영향을 준다. 4 mm의 두꺼운 사출 성형된 플레이트에서 핫 디스크법(hot disk method)을 사용하여 평면 통과 열전도율을 측정하는 경우에, 등방성 충전제에서의 측정 결과는 2 mm의 얇은 사출 성형된 플레이트에서 레이저-플래시법(laser-flash method)을 사용한 측정에서보다 대략 15 내지 20%만큼 더 높은 반면, 소관-형상 충전제에서 핫 디스크법을 사용하면 최대 50% 더 높은 열전도율이 측정된다.

[0020] 이러한 이유로, 열전도율 측정 결과는 배합물의 제조, 배합물 과립의 형상화, 샘플 드로잉 및 열전도율 측정이 동일한 조건 하에서 수행된 경우에 단지 직접적인 비교만 가능하다.

[0021] 일차 입자로서 존재하며 일차 입자의 응집체로서 존재하지 않는 육방정 질화붕소 분말 입자는 이방성 열전도율을 갖는다. 잘 결정화된 질화붕소 분말은 소관-형상의 입자 모폴로지를 갖는다. 질화붕소 소관은 전형적으로 종횡비, 즉, 소관 두께에 대한 소관 직경의 비가 10 초과이다. 소관 통과 열전도율은 소관 평면 내 열전도율에 비해 낮다.

[0022] 배합물이 열가소성 중합체 및 소관-형상의 일차 질화붕소 입자 형태의 질화붕소 분말로부터 제조되는 경우, 일

차 질화붕소 입자는 주로 미세하게 분산된 형태로 존재한다. 그러한 배합물이 사출 성형되는 경우, 대다수의 소판-형상의 일차 질화붕소 입자는, 특히, 박벽화된(thin-walled) 구성 부품에서, 사출 주형의 표면에 평면-평행하게 그리고 구성 부품의 표면에 평면-평행하게 정렬된다. 소판-형상의 일차 질화붕소 입자의 정렬은, 주형 벽에 가까운 영역과 그로부터 멀리 떨어진 영역 사이의 사출 성형된 구성 부품의 전단 속도(shear rate)로 인해 일어난다. 사출 성형된 구성 부품에서의 소판-형상의 일차 질화붕소 입자의 정렬은 특성, 특히 열전도율의 이방성으로 이어진다. 중합체 배합물의 유동 방향의 (평면 내) 벽 두께가 3 mm 이하 또는 2 mm 이하인 박벽화된 구성 부품의 열전도율은 일반적으로 4배 초과로 더 크며, 구성 부품 벽을 통한 (평면 통과) 열전도율은 30 부피 % 이상의 충전제 로딩에서 최대 7배 이상 더 크다. 열가소성 사출 성형된 구성 부품의 열전도율의 이방성은 다수의 응용에서 유리하지 않다. 예를 들어, 하우징 벽을 통한 방열은 낮은 평면 통과 열전도율에서 마찬가지로 낮다. 사출 성형된 하우징을 사용하는 응용에서, 이러한 특성은 유리하지 않은데, 하우징 벽 내의 신속한 열 분포가 가능하지만 하우징 벽을 통한 방열은 불가능하기 때문이다. 이러한 응용을 위해서는, 특히 2차원 영역을 가로질러 열이 소산되어야 하는 경우에는 가능한 한 높은 평면 통과 열전도율이 바람직하다.

[0023] 배합물 중 50 부피% 미만의 질화붕소 분말의 충전제 로딩의 경우, 2 mm 이하의 벽 두께를 갖는 사출 성형된, 박벽화된 구성 부품에서의 평면 통과 열전도율에 대해 일반적으로 1 W/m*K의 값을 넘지 않는다.

[0024] 질화붕소는 중합체 중에 열전도성 충전제로서 소판-형상의 일차 입자의 응집체 형태로 또한 사용될 수 있다. 예를 들어, 분무-건조, 아이소스테틱 프레스링(isostatic pressing), 또는 프레스링 및 후속 소결에 의해, 질화붕소 응집체를 제조하는 다양한 방법이 미국 특허 출원 공개 제2006/0 127 422 A1호, 국제특허 공개 WO 03/013 845 A1호, 미국 특허 제6,048,511호, 유럽 특허 출원 공개 EP 0 939 066 A1호, 미국 특허 출원 공개 제2002/0 006 373 A1호, 미국 특허 출원 공개 제2004/0 208 812 A1호, 국제특허 공개 WO 2005/021 428 A1호, 미국 특허 제 5,854,155호 및 미국 특허 제6,096,671호에 기재되어 있다.

[0025] 이러한 유형의 질화붕소 응집체가 사용될 때, 이축 압출기에서 배합 동안 및/또는 사출 성형 동안 질화붕소 응집체의 강한 분해가 일어나며, 즉, 우세한 비율의 응집체가 일차 질화붕소 입자로 또는 응집체 단편으로 해체되며, 이는, 공정 조건에 따라, 큰 변동으로, 특히 사출 성형된 플레이트의 z-열전도율의 감소로 이어질 수 있다. 이러한 문제는 문헌["Boron Nitride in Thermoplastics: Effect of loading, particle morphology and processing conditions" (Chandrashekar Raman, Proceedings of the NATAS Annual Conference on Thermal Analysis and Applications (2008), 36th 60/1-60/10)]에 언급되어 있다.

[0026] 본 발명에서는, 소판-형상의 응집된 질화붕소 분말을 열가소성 중합체 (다우(Dow) 17450 HDPE)와 배합하였다. 배합은 이축 압출기 (위너 앤드 플라이더러(Werner & Pfleiderer) ZSK-30, L/D 비 28.5, 2 mm 노즐)에서 190°C의 온도 및 100 RPM의 스크루 속도로 수행하였다.

[0027] 구형 PTX60 질화붕소 응집체 (모멘티브 퍼포먼스 머티어리얼스(Momentive Performance Materials), 평균 응집체 크기 d50 = 60 μm)를 HDPE 배합물에서 사용한 경우, 2개의 혼합 구역을 갖는 표준 스크루 구성의 사용이 단지 1개의 혼합 구역을 갖는 변경된 스크루의 사용보다 PTX-60 응집체의 더 큰 분해를 야기하는 것으로 나타났다. 이는 39 부피% (60 중량%)의 충전제 로딩에서 특히 명백하였다. 비교적 거친 가공으로 제조된 배합물의 사출 성형된 인장 바아 샘플에서 측정된 평면 통과 열전도율은, 배합 동안 더 온화한 구성이 사용된 샘플보다, 대략 25% 더 낮은 값(2.05 W/m*K 대신에 1.5 W/m*K)을 갖는 것으로 나타났다. 표준 스크루 구성을 사용하여 제조된 배합물로부터 3.2 mm 두께의 인장 바아 대신에 얇은 1 mm 두께의 플레이트를 사출 성형한 경우, 39 부피% (60 중량%)의 충전제 로딩에서 평면 통과 열전도율은 1.5 W/m*K로부터 0.85 W/m*K로 감소한다. 이러한 유형의 가공의 경우 열전도율은 동일한 충전제 로딩을 갖는 배합물에서 PT120 일차 입자가 사용될 때와 유사하게 낮다. 본 저자는 열전도율의 이러한 감소가 BN 응집체의 분해 때문이라고 생각한다.

[0028] 기재된 실시 형태에서, 이용되는 질화붕소 응집체는, 배합 공정에서, 또는 사출 성형 공정에서, 사출 성형된 배합물에 일차 입자 형태로 주로 존재하도록 하는 정도로 해체되며, 그러한 응집체 형태는 다수의 응용에서, 특히, 얇은 플레이트 또는 하우징 벽을 사출 성형할 때, 높은 평면 통과 열전도율을 위해 사용될 수 없는 것으로 나타났다.

[0029] 독일 특허 출원 공개 DE 10 2010 050 900 A1호는, 질화붕소 소판이 응집체 내에서 우선적인 배향(preferential orientation)을 갖는, 텍스처화된 질화붕소 응집체를 제조하는 방법을 기재한다.

[0030] 그러므로, 본 발명에 의해 다루어지는 목적은, 종래 기술의 단점을 극복하면서, 박벽화된 구성 부품에서 높은 수준의 가공 신뢰도로, 높은 평면 통과 열전도율 값 및 높은 평면 내 열전도율 값을 얻을 수 있는, 열가소성 가

공가능한 중합체/질화붕소 배합물을 제공하는 것이다.

- [0031] 전술한 목적은, 청구항 1에 따른 구성 부품, 청구항 18에 따른 중합체/질화붕소 배합물, 및 청구항 19에 따른 구성 부품의 용도에 의해 달성된다. 구성 부품의 바람직한 또는 특히 실용적인 실시 형태가 종속 청구항 2 내지 청구항 17 및 항목 2 내지 항목 32에 명시되어 있다.
- [0032] 따라서, 본 발명의 요지는 적어도 하나의 부분에서 3 mm 이하의 벽 두께를 갖는, 열가소성 가공에 의해 제조되는 구성 부품이며, 여기서, 구성 부품은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함한다.
- [0033] 본 발명의 추가의 요지는, 그러한 구성 부품의 제조를 위한 중합체/질화붕소 배합물이며, 여기서, 중합체/질화붕소 배합물은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함한다.
- [0034] 본 발명의 추가의 요지는, 냉각될 구성 부품 또는 조립체, 바람직하게는 전자 구성 부품 또는 조립체로부터의 방열을 위한 그러한 구성 부품의 용도이다.
- [0035] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물은, 중합체/질화붕소 배합물로부터 제조된 사출 성형된, 박벽화된 구성 부품의 낮은 평면 통과 열전도율의 단점을 극복할 수 있다.
- [0036] 평면 통과 열전도율은 평면 통과 방향에서, 즉 플레이트 평면에 수직하게 측정되는 열전도율이다. 평면 내 열전도율은 평면 내 방향에서, 즉 플레이트 평면을 따라 측정되는 열전도율이다.
- [0037] 놀랍게도, 사출 성형된, 박벽화된 구성 부품의 평면 통과 열전도율이 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물에 의해 현저하게 증가될 수 있는 한편, 동시에 양호한 평면 내 열전도율이 유지되는 것으로 나타났다.
- [0038] 동일한 비율의 질화붕소를 사용할 때, 응집되지 않은 질화붕소 분말을 사용하는 경우보다 질화붕소 응집체를 사용하는 본 발명에 따른 구성 부품에서 더 높은 열전도율 값을 달성할 수 있다. 질화붕소 응집체를 사용함으로써, 질화붕소 중합체 배합물 및 그로부터 제조되는 구성 부품에서, 응집되지 않은 질화붕소 분말을 사용하는 것보다 더 높은 충전제 로딩을 달성할 수 있다.
- [0039] 놀랍게도, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물은 사용되는 질화붕소 응집체의 강한 분해 없이 비교적 거친 배합에 의해서 또한 가공될 수 있다. 심지어 박벽 구성 부품이 사출 성형될 때에도, 질화붕소 응집체의 강한 분해가 없다. 본 발명에 따른 구성 부품은 재현가능한 열전도율 특성 및 기계적 특성과 함께 높은 수준의 가공 신뢰도로 제조될 수 있다.
- [0040] 본 발명에 따른 구성 부품을 제조하는 데 사용되는 질화붕소 응집체는 높은 응집체 안정성을 나타낸다. 놀랍게도, 이축 압출기에서 배합 동안 혼합 요소에서 및 전단/분산 요소에서의 전단은 사용되는 질화붕소 응집체의 분해, 또는 완전한 분해를 가져오지 않는다. 구성 부품에서의 높은 열전도율을 야기하며 충전제 분해의 문제가 특히 심한 높은 충전제 로딩에서조차도, 사용되는 질화붕소 응집체는 일차 입자 또는 응집체 파편으로 강하게 분해되지 않거나, 또는 단지 부분적으로만 분해된다.
- [0041] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물은, 두께가 3 mm 이하인 얇은 플레이트로 가공될 때, 1.5 내지 4의 이방성 비를 나타낸다는 점에서 유리하다. 주로 등방성 질화붕소 응집체가 사용되는 경우 배합물 및 그로부터 사출 성형된 플레이트 및 구성 부품에서의 열전도율은 실질적으로 등방성일 것으로 예상될 것이기 때문에, 이는 놀라운 것이다. 심지어 거친 배합의 경우에도, 일부의 응집체가 분해된 때조차도, 사출 성형된 얇은 플레이트에 대해 이러한 비가 유지된다.
- [0042] 심지어 종횡비가 10 초과인 이방성 소판-형상 또는 비늘형(scale-like) 질화붕소 응집체가 사용될 때에도, 바람직하게는 사출 성형된 얇은 플레이트를 사용하여 얻어지는 1.5 내지 4의 이방성 비는 당업자에게 놀라운 것이다. 소판-형상의 질화붕소 응집체는 얇은 플레이트 내에 정렬될 것이며, 이는 증가된 평면 내 열전도율 및 증가된 이방성 비의 이점에 대해 평면 통과 열전도율의 감소를 수반할 것으로 예상될 것이다.
- [0043] 이방성 비는, 잘 결정화된 소판-형상의 질화붕소 분말이 사용되는 경우보다 현저히 더 작다.
- [0044] 1.5 내지 4의 열전도율의 이방성 비가 방열을 위해, 특히 얇은 플레이트 또는 하우징 벽에서 유리하다.
- [0045] 심지어 질화붕소 응집체와 본 발명에 따른 구성 부품을 위한 제2 충전제와의 충전제 조합이 사용될 때에도, 1.5 내지 4의 열전도율의 바람직한 이방성 비가 유지될 것으로는 또한 예상되지 않았다. 이는 놀라운 것인데, 당업

자는 실질적으로 등방성 제2 충전제를 사용하는 경우에는 이방성 비가 현저하게 감소할 것으로 예상할 것이기 때문이다. 중합체와 개별 성분의 배합물, 즉, 중합체와 질화붕소 응집체로 이루어진 배합물, 및 중합체와 제2 충전제로 이루어진 배합물로부터 제조된 사출 성형된 플레이트의 열전도율의 수학적으로 합계된 값보다, 사출 성형된 플레이트에서 질화붕소 응집체 및 제2 충전제로 이루어진 충전제 조합의 경우에 평면 통과 열전도율 및 평면 내 열전도율 둘 모두가 더 높다는 것은 더욱 놀라운 것이다.

[0046] 질화붕소 응집체와 제2 충전제의 충전제 조합을 사용하는 경우, 놀랍게도, 질화붕소 응집체를 단독으로 사용하는 것과 비교하여, 추가적인 제2 충전제가 사용될 때 동일한 비율의 질화붕소 응집체에 의해 열전도율이 평면 통과 방향에서 현저하게 증가할 뿐만 아니라, 동시에 평면 내 방향에서도 크게 증가하는 것으로 나타났다.

[0047] 열전도성 충전제 및 보강 충전제의 충전제 로딩이 너무 높지 않은 중합체/질화붕소 배합물이 본 발명에 따른 구성 부품을 제조하는 데 사용될 수 있다는 것은 더욱 놀라운 것이다. 따라서, 충전된 중합체 재료의 특성을 추가로 조정하기 위하여, 추가의 첨가제 및 충전제를 첨가할 수 있어서, 대부분의 표준 열가소성 중합체에서, 50 부피% 이하의 총 충전제 로딩이 가능하고 TPE 중합체 (열가소성 탄성중합체)에서, 예를 들어, 70 부피% 이하의 수준이 가능하다.

도면의 간단한 설명

[0048] 도 1은 스프루(sprue)를 갖는 $80 \times 80 \times 2$ mm 치수의 얇은, 사출 성형된 플레이트, 및 열전도율 값 (평면 내 열전도율 및 평면 통과 열전도율)이 계산되는 평면 내 방향 및 평면 통과 방향을 나타낸다.

도 2a 및 도 2b는 평면 통과 열전도율 및 평면 내 열전도율을 측정하는 데 사용된 샘플을 나타낸다. 도 2a는 도 1의 사출 성형된 플레이트의 중심으로부터 제조되고 평면 통과 열전도율을 측정하는 데 사용된 $10 \times 10 \times 2$ mm 치수의 샘플을 나타낸다. 도 2b는 평면 내 열전도율을 측정하기 위한 샘플의 제조를 나타낸다. 먼저, 순간 접착제(instant glue)를 사용하여 접착시켜 치수 $10 \times 10 \times 2$ mm인 샘플들의 플레이트 스택을 제조하였는데, 이 경우 치수가 $80 \times 80 \times 2$ mm인 사출 성형된 플레이트로 이루어진 상기 샘플들을 제조하였다. 플레이트 스택으로부터, 평면 통과 방향에 평행하게 그리고 사출 성형된 플레이트의 유동 방향에 수직하게 샘플을 제조한다. 이러한 샘플에서, 평면 내 열전도율을 결정한다.

도 3a 및 도 3b는 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용된 실시예 18로부터의 질화붕소 응집체의 SEM (주사 전자 현미경) 이미지를 나타낸다. 도 3a는, 다수의 개별 소관-형상의 일차 질화붕소 입자로부터 구축된, 응집체 직경이 25 μ m인 질화붕소 응집체뿐만 아니라 스크리닝에 의해 제거되지 않고 생성물 중에 남아있는 미세분(fine)의 SEM 이미지를 나타낸다. 도 3b는 응집체 안정성을 결정하는 데 사용된 100 내지 200 μ m 체 분획(sieve fraction)을 나타낸다.

도 4a 및 도 4b는 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용된 실시예 1로부터의 질화붕소 응집체의 SEM 이미지를 나타낸다. 도 4a는 500 μ m 미만의 체 분획에서의 질화붕소 응집체의 개관 이미지(overview image)를 나타낸다. 도 4b는 두께가 30 μ m인 응집체의 확대된 표면을 나타낸다.

도 5는 실시예 29로부터의 500 μ m 미만의 체 분획에서, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용된 질화붕소 응집체의 SEM 개관 이미지를 나타낸다. 질화붕소 응집체의 두께는 10 μ m이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0049] 상기에 이미 언급된 바와 같이, 평면 통과 열전도율은 평면 통과 방향에서, 즉, 플레이트 평면에 수직하게 측정되는 열전도율이다. 평면 내 열전도율은 평면 내 방향에서, 즉, 플레이트 평면에서 측정되는 열전도율이다.

[0050] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 평면 통과 열전도율은 바람직하게는 1 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.2 W/m*K 이상, 더욱 더 바람직하게는 1.5 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 1.8 W/m*K 이상이다. 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크-형상의, 사출 성형된 샘플에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정된다.

[0051] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 평면 내 열전도율은 바람직하게는 1.5 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.8 W/m*K 이상, 더욱 더 바람직하게는 2.2 W/m*K 이상 및 특히 바람직하게는 2.7 W/m*K 이상이다.

[0052] 평면 내 열전도율을 측정하기 위해, 두께가 2 mm인 디스크-형상의 사출 성형된 샘플을 겹쳐서 쌓고 함께 접착시킨다. 그렇게 제조된 플레이트 스택으로부터, 평면 통과 방향에 평행하게 그리고 사출 성형된 플레이트의 유동 방향에 수직으로, 치수 $2 \times 10 \times 10$ mm인 2 mm의 얇은 샘플을 제조한다. 평면 내 열전도율은 그렇게 제조된

2 mm 두께의 샘플에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정된다.

- [0053] 본 발명에 따른 구성 부품 및 질화붕소/중합체 배합물의 평면 통과 열전도율에 대한 평면 내 열전도율의 이방성 비는 바람직하게는 1.5 이상 4 이하, 더욱 바람직하게는 1.5 이상 3.5 이하, 더욱 더 바람직하게는 1.5 이상 3.0 이하, 및 특히 바람직하게는 1.5 이상 2.5 이하이다.
- [0054] 이방성 비는 기재된 바와 같이 결정된 평면 내 열전도율을 취하고, 이것을 기재된 바와 같이 측정된 평면 통과 열전도율로 나누어서 계산된다.
- [0055] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 평면 통과 열전도율은, 열전도성 충전제가 없는 중합체 재료의 열전도율보다, 바람직하게는 0.8 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1 W/m*K 이상, 더욱 더 바람직하게는 1.3 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 1.6 W/m*K 이상 더 크다.
- [0056] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 평면 내 열전도율은, 열전도성 충전제가 없는 중합체 재료의 열전도율보다, 바람직하게는 1.3 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.6 W/m*K 이상, 더욱 더 바람직하게는 2.0 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 2.5 W/m*K 이상 더 크다.
- [0057] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중의 질화붕소 응집체의 비율은, 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로, 바람직하게는 5 부피% 이상, 더욱 바람직하게는 10 부피% 이상, 더욱 바람직하게는 20 부피% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 부피% 이상이다.
- [0058] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중의 질화붕소 응집체의 비율은, 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로, 바람직하게는 70 부피% 이하, 더욱 바람직하게는 60 부피% 이하, 및 특히 바람직하게는 50 부피% 이하이다.
- [0059] 열가소성 가공가능한 중합체가 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물을 위한 중합체로서 사용된다. 이들은 특히 열가소성 재료인, 폴리아미드 (PA), 폴리페닐렌 설파이드 (PPS), 폴리카르보네이트 (PC), 폴리프로필렌 (PP), 열가소성 탄성중합체 (TPE), 열가소성 폴리우레탄 탄성중합체 (TPU), 및 폴리에테르 에테르 케톤 (PEEK), 액정 중합체 (LCP), 및 폴리옥시메틸렌 (POM)이다. 열가소성 가공가능한 듀로플라스틱 (duroplastic) 성형 재료가 또한 중합체로서 사용될 수 있다.
- [0060] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용되는 질화붕소 응집체는 높은 응집체 안정성을 갖는다. 높은 응집체 안정성을 갖는 질화붕소 응집체는, 중합체가 질화붕소 충전제와 함께 배합될 때, 특히 그러한 중합체가 높은 충전제 로딩을 가질 때 일어나는 것과 같은 고전단력의 영향 하에서조차도 단지 부분적으로만 일차 입자 또는 응집체 단편으로 분해된다. 부분적인 분해에도 불구하고, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물의 유리한 특성, 특히 이방성 비가 유지된다.
- [0061] 응집체의 안정성은, 예를 들어, 레이저 입도분석(granulometry)에 의해 응집체 크기를 측정하면서 동시에, 초음파 실험에서 시험될 수 있는데, 이러한 실험에서는 초음파의 영향으로 인해 응집체가 시간 경과에 따라 해체된다. 응집체의 해체를 시간 경과에 따른 응집체 크기의 변화를 통해 기록하며, 여기서, 응집체의 안정성에 따라 상이한 곡선이 형성된다. 연한 응집체는 기계적으로 더 안정한 응집체보다 더 빨리 해체된다.
- [0062] 응집체 안정성을 측정하기 위해, 200 μ m 미만의 질화붕소 응집체를 부수고, 체질(sieving)하여 100 μ m 미만의 미세분을 제거한다. 그렇게 얻은 100 내지 200 μ m의 체 분획에 대해, 레이저 입도분석기 (분산 유닛 하이드로 (Hydro) 2000S를 갖는 마스터사이저(Mastersizer) 2000, 독일 헤렌베르크 소재의 몰번(Malvern))에 의해 응집체 안정성을 결정한다. 이를 위해, 물 중 습윤제로 이루어진 용액 (10 L의 증류수 중 2 mL의 행균제 (G 530 스푼필스(Spülfix), 독일 메밍엔 소재의 부질-베르크 마그너 게엠베하 운트 코. 카게(BUZIL-Werk Wagner GmbH & Co. KG)) 및 0.375 mL의 임벤팀(Imbentin) (폴리에틸렌 글리콜 알킬 에테르)의 혼합물)을 분산 매질로서 사용한다. 스냅-온(snap-on) 캡을 갖는 바이알 (8 mL)에서, 6 mL의 분산 매질을 사용하여 10 내지 20 mg의 응집체를 진탕에 의해 분산시킨다. 피펫을 사용하여 샘플로부터 현탁액을 취하고, 레이저 차폐율(laser obscuration)이 5% (구체적인 범위: 5 내지 30%)에 도달할 때까지 레이저 입도분석기의 습식 셀(wet cell) 내로 적하한다. 측정은 초음파 없이 시작하고, 매 15초마다 초음파를 사용한 추가 측정을 실시하는데, 여기서 분산 유닛의 초음파 출력 (이는 장치 소프트웨어를 통해 0 내지 100%의 값으로 설정될 수 있음)은 각각의 경우에 최대 출력의 5%로 설정된다. 총 10회의 측정을 실시한다. 측정 시에, 분산 유닛의 교반기는 1750 RPM에서 작동한다. 10회의 측정 후의 d_{90} 값과 최초 측정의 d_{90} 값의 비율을 (100을 곱하여 퍼센트로 나타내어) 응집체 안정성의 척도로서 사용한다. 본 명세서에 기재된 측정 방법은 이하에서 "초음파법"으로 또한 지칭된다.

- [0063] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 본 발명에 따른 구성 부품에 사용되는 질화붕소 응집체에 대한 응집체 안정성은 바람직하게는 40% 이상, 더욱 바람직하게는 50% 이상, 특히 바람직하게는 60% 이상이다. 이 경우에, 응집체 안정성은 상기에 기재된 초음파법을 사용하여 결정된다.
- [0064] 바람직하게는 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 본 발명에 따른 구성 부품에 사용되는 비늘형 질화붕소 응집체의 비표면적 (BET)은 바람직하게는 $20 \text{ m}^2/\text{g}$ 이하, 더욱 바람직하게는 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 이하이다.
- [0065] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 본 발명에 따른 구성 부품에 사용되는 질화붕소 응집체는, 응집되지 않은 질화붕소 분말과 대조적으로, 부울 수 있으며 투입이 용이하다.
- [0066] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 바람직한 실시 형태에서, 주로 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체가 질화붕소 응집체로서 사용된다. 이러한 질화붕소 응집체는 소판-형상의 육방정 일차 질화붕소 입자의 응집체인데, 여기서, 육방정 일차 질화붕소 입자는 무기 결합제 상에 의해 서로 결합된다. 무기 결합제 상은 하나 이상의 질화물 및/또는 산질화물을 포함한다. 질화물 및 산질화물은 바람직하게는 알루미늄 원소, 규소 원소, 티타늄 원소 및 붕소 원소의 화합물이다. 이러한 질화붕소 응집체는 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체, 또는 질화물 결합제 상을 갖는 등방성 질화붕소 응집체로 또한 지칭될 수 있다. 이러한 응집체 내의 질화붕소 소판들은 본질적으로 서로에 대해 선호되는 방향이 없이 배향되는데, 이는 본질적으로 등방성 특성을 가짐을 의미한다. 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체는 하기에서 질화붕소 하이브리드 응집체로서 또한 지칭된다.
- [0067] 그러한 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체를 제조하기 위해서, 일차 질화붕소 입자 또는 비정질 질화붕소 형태의 질화붕소 공급원료 분말을 결합제 상 원료와 혼합하고, 과립 또는 형상화된 조각으로 가공하고, 이어서 이것을 질화 분위기에서 $1,600^\circ\text{C}$ 이상의 온도에서 처리하고, 이어서, 해당하는 경우, 얻어진 과립 또는 형상화된 조각을 분쇄(comminute) 및/또는 세분(fractionate)한다.
- [0068] 결합제 상에 함유된 질화물 및 산질화물은 바람직하게는 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si_3N_4) 및 질화붕소 (BN), 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄 및/또는 질화규소, 추가로 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄이다. 결합제 상은 특히 바람직하게는 질화알루미늄을 함유한다.
- [0069] 결합제 상의 질화물 및 산질화물은 비정질, 부분 결정질 또는 결정질일 수 있다. 결합제 상은 바람직하게는 결정질이다.
- [0070] 질화물 결합제 상은, 산화붕소 (B_2O_3), 산화알루미늄 (Al_2O_3), 이산화규소 (SiO_2), 이산화티타늄 (TiO_2), 산화이트륨 (Y_2O_3), 산화마그네슘 (MgO), 산화칼슘 (CaO) 및 회토류 금속 산화물과 같은 산화물 상을 또한 함유할 수 있다.
- [0071] 게다가, 결합제 상은 붕산염, 예를 들어, 붕산알루미늄 또는 붕산칼슘을 또한 함유할 수 있다. 추가로, 결합제 상은 불순물, 예를 들어, 탄소, 금속 불순물, 원소 붕소, 붕화물, 탄화붕소, 또는 다른 탄화물, 예를 들어, 탄화규소를 또한 함유할 수 있다.
- [0072] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체 중의 질화물 결합제 상의 비율은, 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로, 바람직하게는 1 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 5 중량% 이상, 더욱 더 바람직하게는 10 중량% 이상, 더욱 더 바람직하게는 20 중량% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 중량% 이상이다.
- [0073] 결합제 상 중의 질화물 및 산질화물의 비율은, 총 결합제 상을 기준으로, 바람직하게는 50 중량% 이상, 및 특히 바람직하게는 80 중량% 이상이다.
- [0074] 결합제 상은 응집체 내의 일차 질화붕소 입자에 결합하여서, 결합제가 없는 응집체와 비교하여 더 기계적으로 안정한 응집체가 얻어질 수 있다.
- [0075] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체는 제조 방법에 따라 둥근형(round) 내지 구형(spherical) 또는 블록형(blocky) 및 각형(angular)일 수 있다. 분무 건조에 의해 제조되는 응집체는 심지어 질화 후에도 그의 둥근형 내지 구형 형상을 유지한다. 압밀 및 분쇄에 의해 제조된 응집체는 블록형 또는 덩어리형(chunky), 각형 또는 에지형(edged) 형상인 경향이 있다.
- [0076] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물을 제조할 때, 바람직하게는 사용되는 질화물-결합된 등방성 질화붕소

응집체는 평균 응집체 직경 (d_{50})이 1000 μm 이하, 더욱 바람직하게는 500 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 400 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 300 μm 이하, 및 더욱 더 바람직하게는 200 μm 이하이다. 평균 응집체 직경 (d_{50})은 레이저 회절 (습식 측정, 마스터사izer 2000, 몰번)에 의해 결정될 수 있다. 평균 응집체 직경은, 응집체 제조에 사용된 일차 질화붕소 입자의 평균 입자 크기보다 2배 이상 더 크고, 바람직하게는 3배 이상 더 크다. 평균 응집체 직경은, 응집체 제조에 사용된 일차 질화붕소 입자의 평균 입자 크기보다 10배 또는 또한 50배 이상 더 클 수 있다. 질화물-결합된 등방성 질화물 응집체에서 일차 입자의 평균 입자 크기 (d_{50})는 50 μm 이하, 바람직하게는 30 μm 이하, 더욱 바람직하게는 15 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 10 μm 이하 및 특히 바람직하게는 6 μm 이하이다.

[0077] 중합체/질화붕소 배합물을 배합하는 데 사용되는 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체는 중형비가 1.0 내지 1.8, 바람직하게는 1.0 내지 1.5이다.

[0078] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체는 고밀도의 질화붕소 응집체이다.

[0079] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체 내의 개별 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들 사이에 직접 접촉 지점이 존재하며, 이는 일차 질화붕소 입자로 이루어진 질화붕소 응집체 내에 연속적인 열 전도 경로를 생성한다.

[0080] 육방정 질화붕소, 비정질 질화붕소, 부분 결정질 질화붕소 및 이들의 혼합물이, 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체를 제조하기 위한 질화붕소 공급원료 분말로서 사용될 수 있다.

[0081] 사용되는 질화붕소 분말의 평균 입자 크기 (d_{50})는 0.5 내지 50 μm , 바람직하게는 0.5 내지 15 μm , 및 더욱 바람직하게는 0.5 내지 5 μm 일 수 있다. 예를 들어, 평균 입자 크기가 1 μm , 3 μm , 6 μm , 9 μm 및 15 μm 인 육방정 질화붕소 분말이 사용될 수 있지만, 최대 50 μm 의 더 큰 평균 입자 크기가 또한 가능하다. 상이한 입자 크기를 갖는 상이한 육방정 질화붕소 분말의 혼합물이 마찬가지로 사용될 수 있다. 사용되는 질화붕소 분말의 평균 입자 크기 (d_{50})의 측정은 전형적으로 레이저 회절(습식 측정, 마스터사izer 2000, 몰번)에 의해 수행된다.

[0082] B_2O_3 이 없는 질화붕소 분말, 및 최대 0.5 중량%의 더 낮은 B_2O_3 함량을 갖는 질화붕소 분말이 사용될 수 있지만, 최대 10 중량% 이상의 더 높은 B_2O_3 함량을 갖는 질화붕소 분말이 또한 사용될 수 있다.

[0083] 결합제 상 원료는 고체 또는 액체 또는 페이스트형 형태로 존재할 수 있다.

[0084] 질화붕소 공급원료 분말 및 결합제 상 원료의 혼합은, 예를 들어 V-혼합기, 드럼 후프 혼합기(drum hoop mixer), 진동 튜브 밀(vibrating tube mill) 또는 아이리히(Eirich) 혼합기에서, 혼합 드럼에서 수행될 수 있다. 후속 밀링 단계에서, 예를 들어, 크로스비터 밀(crossbeater mill), 텀블링 밀 또는 교반기 비드 밀에서 균질성이 추가로 증가될 수 있다. 분말 혼합물은 건조하거나 축축할 수 있다. 마찬가지로, 프레싱 보조제, 및 필요하다면, 윤활 보조제를 첨가할 수 있다. 예를 들어 후속하는 과립 제조가 분무-건조 또는 빌드-업 과립화(build-up granulation)를 통해 수행되는 경우, 혼합은 또한 습윤 상태로 수행될 수 있다.

[0085] 환원제와 조합된 금속 화합물이 질화물 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료로서 또한 사용될 수 있으며, 이때 질화물 결합제 상은 환원 질화에 의해 제조된다. 사용되는 금속 화합물은 바람직하게는 알루미늄 원소, 규소 원소 및 티타늄 원소로부터의 화합물, 바람직하게는 산화알루미늄 (Al_2O_3), 수산화알루미늄 ($\text{Al}(\text{OH})_3$), 베마이트(boehmite) ($\text{Al}(\text{OH})_3$), 이산화규소 (SiO_2) 및 이산화티타늄 (TiO_2)과 같은 산화물 및/또는 수산화물이다. 금속 화합물은 또한 붕산알루미늄과 같은 붕산염일 수 있다. 탄소 및 수소뿐만 아니라, 예를 들어 폴리비닐 부티랄 (PVB), 멜라민 및 메탄과 같은 유기 화합물이 환원제로서 사용될 수 있다. 예를 들어 수소 또는 메탄과 같은 가스상 물질이 환원제로서 사용되는 경우, 이러한 물질은 질화 분위기에 첨가된다. 또한, 환원에 필요한 환원제가 금속 화합물에 이미 존재할 수 있으며, 따라서, 예를 들어 알루미늄 아이소프로폭사이드, 테트라에틸 오르토실리케이트 또는 티타늄 아이소프로폭사이드를 결합제 원료로서 사용하는 경우, 추가적인 환원제의 사용이 불필요하다. 질화 단계에서, 금속 화합물은 상응하는 금속 질화물로 전환된다. 질화 동안 산질화물, 또는 금속 질화물 및 산질화물의 혼합물이 또한 형성될 수 있으며; 마찬가지로, 결합제 상은 잔류 미반응 산화물을 여전히 함유할 수 있다.

[0086] 질화붕소를 제조하기 위한 반응물은 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료로서 또한 사용될 수 있다. 질화붕소를 제조하기 위한 반응물은, 예를 들어 붕산 (H_3BO_3) 및

산화붕소 (B_2O_3)와 같은 산화물성 붕소 공급원을, 예를 들어 탄소 또는 수소 또는 유기 화합물, 예를 들어 폴리비닐 알코올 (PVA), 폴리비닐 부티랄 (PVB), 멜라민 및 메탄과 같은 환원제와 조합하여 함유할 수 있다. 예를 들어 수소 또는 메탄과 같은 가스상 물질이 환원제로서 사용되는 경우, 이러한 물질은 질화 분위기에 첨가된다. 원소 붕소, 탄화붕소 및 트라이메틸 보레이트와 같은 실질적으로 산소가 없는 붕소 공급원이 또한 질화붕소를 생성하기 위한 반응물로서 사용될 수 있다. 질화 단계에서, 이러한 원료는 욕방정 질화붕소로 전환된다.

[0087] 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하는 데 사용되는 결합제 상 원료는 또한 질화 분위기에서의 열처리 동안 응고되는 질화물 재료일 수 있다. 질화물 재료는 알루미늄 또는 규소의 질화물 및/또는 산질화물 화합물일 수 있지만, 질화티타늄 및 희토류 질화물이 또한 사용될 수 있으며; 마찬가지로, 사이알론으로 이루어진 군으로부터의 화합물이 사용될 수 있다. 예를 들어 산화이트륨, 산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화칼슘, 산화규소 및 희토류 산화물과 같은 액체 상이 소결 보조제로서 사용될 수 있다.

[0088] 열거된 상이한 결합제 상 원료들의 혼합물을 사용하는 것이 또한 가능하다.

[0089] 후속 분쇄 및/또는 세분 단계에서, 형상화된 조각 또는 과립은 질화 분위기에서 열처리 후에 필요하다면 원하는 응집체 크기로 분쇄 또는 세분되어서, 본 발명에 따른 질화물-결합된 응집체를 생성한다. 원료의 과립화 동안 최종 응집체 크기가 이미 달성된 경우, 예를 들어 과립화가 분무 건조 또는 빌드-업 과립화에 의해 수행된 경우, 질화 후의 분쇄 단계는 일어나지 않는다.

[0090] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체의 목표 응집체 크기를 달성하기 위해서, 스크리닝, 스크린 세분(screen fractioning) 및 시프팅(sifting)과 같은 통상적인 단계가 수행될 수 있다. 미세분이 함유된 경우, 먼저 제거될 수 있다. 스크리닝의 대안으로서, 응집체의 규정된 분쇄는 또한 체 그레이터(sieve grater), 분급기 밀(classifier mill), 구조화된 롤러 파쇄기(structured roller crusher) 및 커팅 휠(cutting wheel)을 사용하여 수행될 수 있다. 예를 들어, 볼 밀에서의 그라인딩이 또한 가능하다.

[0091] 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체는, 그의 제조 후에, 추가의 처리를 거칠 수 있다. 이러한 경우에, 예를 들어, 하기의 가능한 처리들 중 하나 이상이 수행될 수 있다:

[0092] - 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체의 표면 산화를 야기하는, 산소 하에서의 열처리. 예를 들어, 표면의 TiO_2 를 갖는 응집체는 질화티타늄 (TiN)을 함유하는 결합제 상을 사용하여 $500^\circ C$ 초과에서 공기 중 산화에 의해 제조될 수 있고; 표면의 SiO_2 는 질화규소 (Si_3N_4)를 함유하는 결합제 상을 사용하여 제조될 수 있고, 표면의 산화알루미늄 (Al_2O_3)은 질화알루미늄 (AlN)을 함유하는 결합제 상을 사용하여 제조될 수 있다.

[0093] - 스팀 처리

[0094] - 실온에서 또는 열의 영향 하에서, 캐리어 또는 반응 가스를 사용한, 실란, 티타네이트 또는 다른 유기금속 화합물에 의한 표면 개질 이러한 표면 개질은 또한 질화물 결합제 상의 내가수분해성을 증가시킨다.

[0095] - 중합체, 예를 들어 폴리에틸렌 글리콜 (PEG), 폴리비닐 알코올 (PVA), 폴리비닐 부티랄 (PVB), 폴리비닐 피롤리돈 (PVP), 공중합체, 아크릴레이트, 오일 또는 카르복실산에 의한 표면 개질

[0096] - 졸-겔 시스템, 예를 들어 베마이트 졸 또는 SiO_2 졸에 의한, 또는 수용성 유리 또는 나노입자 또는 표면-개질된 나노입자 또는 이들의 혼합물에 의한 침윤(infiltration).

[0097] - 수용성 또는 에탄올-용해성 중합체에 의한 침윤. 질화붕소 응집체는, 예를 들어, 실리콘, 에폭시 또는 폴리우레탄 수지와 같은 수지로 침윤될 수 있으며, 수지는 배합 전에 또는 중에 경질화제에 의해 경질화될 수 있거나 또는 열-경질화될 수 있다.

[0098] 열거된 표면 처리는 또한 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체와, 예를 들어, 일차 질화붕소 입자와 같은 다른 질화붕소 충전제와의 혼합물에 대해 수행될 수 있다.

[0099] 또한, 열거된 처리들 중 몇몇을 임의의 순서로 조합할 수 있다. 예를 들어, 처리는 유동층(fluidized bed) 방법으로 수행될 수 있다.

[0100] 열거된 처리를 사용하여, 질화물-결합된 등방성 응집체에 대한 중합체 매트릭스의 개선된 커플링을 달성할 수 있다.

[0101] 달리 필적하는 가공 조건 하에서, 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체의 평면 통과 열전도율은, 응집되지 않

은 소판-형상의 질화붕소를 사용하는 것과 비교하여, 30 부피%의 충전제 로딩에서 40% 초과만큼 증가될 수 있고, 40 부피%의 충전제 로딩에서 70% 초과만큼 증가될 수 있다. 이러한 증가가 이축 압출기에서의 거친 배합을 사용하고 얇은 플레이트를 사출 성형할 때 또한 달성된다는 것이 특히 놀라운 것이다.

[0102]

본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 추가로 바람직한 실시 형태에서, 실질적으로 이방성 비늘형 질화붕소 응집체가 질화붕소 응집체로서 사용된다. 이들 질화붕소 응집체는 소판-형상의 육방정 일차 질화붕소 입자들을 포함하는 응집체인데, 그러한 입자들은 함께 응집되어 비늘형 질화붕소 응집체를 형성한다. 이러한 질화붕소 응집체는 비늘형 질화붕소 응집체 또는 질화붕소 플레이크(flake)로 또한 지칭될 수 있다. 이러한 질화붕소 플레이크는, 영문 문헌에서 "플레이키 질화붕소 입자"(flaky boron nitride particle)로 종종 지칭되는, 응집되지 않은 소판-형상의 일차 질화붕소 입자와는 구별되어야 한다. 비늘형 질화붕소 응집체의 구조는 다수의 개별 질화붕소 소판으로부터 구축된다. 이러한 응집체 내의 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들은 서로를 향해 무작위로 배향되지 않는다. 비늘형 질화붕소 응집체는 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들을 포함하는데, 입자들의 소판 평면은 서로 평행하게 정렬된다. 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들은 바람직하게는 일차 질화붕소 입자들의 소판 평면이 서로에 대해 실질적으로 평행하게 정렬되도록 하는 방식으로 함께 응집된다. 비늘형 질화붕소 응집체는 이방성 특성을 갖는데, 이러한 응집체 내의 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들이 서로에 대해 무작위로 배향되지 않기 때문이다.

[0103]

이방성 비늘형 질화붕소 응집체 내의 소판-형상의 일차 질화붕소 입자의 정렬 정도는 텍스처 지수(texture index)에 의해 특징지어질 수 있다. 소판-형상의 일차 질화붕소 입자의 완전 등방성 정렬을 갖는, 즉, 임의의 특정 방향에 대한 선호를 갖지 않는 육방정 질화붕소 (hBN)의 텍스처 지수는 1이다. 텍스처 지수는 샘플 내의 배향 정도에 따라 상승하며, 즉, 더 많은 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들이 겹쳐서 또는 그들의 기부 표면에서 서로 평행하게 정렬되거나, 또는 더 많은 일차 질화붕소 입자들의 소판 평면들이 서로 평행하게 정렬된다. 본 발명에 따른 구성 부품에 사용되는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 텍스처 지수는 바람직하게는 2.0 초과, 더욱 바람직하게는 2.5 이상, 더욱 더 바람직하게는 3.0 이상 및 특히 바람직하게는 3.5 이상의 값이다. 응집체의 텍스처 지수는 또한 5.0 이상 및 10.0 이상의 값을 가질 수 있다. 비늘형 질화붕소 응집체의 텍스처 지수는 바람직하게는 200 이하의 값, 더욱 바람직하게는 50 이하의 값이다. 텍스처 지수는 X-선 라디오그래피(X-ray radiography)에 의해 결정된다. 이를 위하여, X-선 회절 다이어그램을 측정함으로써 (002) 및 (100) 회절 리플렉스(reflex)의 강도의 비를 결정하고, 이것을 이상적인 비-텍스처화된 hBN 샘플에 대한 상응하는 비로 나눈다. 이러한 이상적인 비는 JCPDS 데이터로부터 결정할 수 있으며, 이는 7.29이다.

[0104]

따라서, 질화붕소 응집체의 텍스처 지수 (TI)는 하기 식에 따라 계산할 수 있다

$$TI = \frac{I_{(002), \text{샘플}} / I_{(100), \text{샘플}}}{I_{(002), \text{이론}} / I_{(100), \text{이론}}} = \frac{I_{(002), \text{샘플}} / I_{(100), \text{샘플}}}{7.29}$$

[0105]

[0106]

이는 질화붕소 응집체의 X-선 회절 다이어그램의 (002) 및 (100) 회절 리플렉스의 강도의 비 $I_{(002)}/I_{(100)}$ 를 수치 7.29로 나눈 것이다. 질화붕소 응집체의 텍스처 지수는 벌크 질화붕소 응집체에 대해 측정된다. 측정은 20℃의 온도에서 수행된다.

[0107]

(비늘형 응집체의 상부 또는 하부 표면의 면적을 기준으로) 약 3.5 cm²의 크기를 갖는 큰 비늘형 개별 응집체에서 텍스처 지수를 결정하는 경우, 100 이상 약 500 이하의 매우 큰 값이 텍스처 지수에 대해 얻어질 수 있다. 큰 비늘형 응집체에서 측정되는 이러한 값은 비늘형 질화붕소 응집체에서의 일차 입자들의 매우 강한 정렬의 증거이다. 바람직하게는 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용되는 비늘형 질화붕소 응집체에서 텍스처 지수를 측정할 때 (이는 상기에 이미 기재된 바와 같이 충전되는 응집체에 대해 수행됨), X-선 라디오그래피 측정을 위한 샘플 캐리어에서 부분적 정적 정렬이 일어난다. 따라서, 1 mm 이하의 크기를 갖는 더 작은 비늘형 응집체에서 얻어지는 텍스처 지수 값은 개별 비늘형 응집체 내의 일차 입자들의 상응하는 배향보다 항상 더 낮다.

[0108]

본 발명에 따른 구성 부품 및 질화붕소/중합체 배합물에 사용되는 등방성 질화물-결합된 응집체의 텍스처 지수는 바람직하게는 1.0 내지 2.0 미만의 값이다.

[0109]

본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 구성 부품에서, 바람직하게는 사용되는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체는 평균 응집체 직경 (d_{50})이 1000 μm 이하, 더욱 바람직하게는 500 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 300 μm 이하 및 특히 바람직하게는 200 μm 이하이다. 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 구성 부품에 사

용되는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 평균 응집체 직경 (d_{50})은 바람직하게는 20 μm 이상, 더욱 바람직하게는 30 μm 이상, 더욱 더 바람직하게는 50 μm 이상 및 특히 바람직하게는 100 μm 이상이다. 평균 응집체 직경 (d_{50})은 레이저 회절 (습식 측정, 마스터사이즈 2000, 몰번)에 의해 결정될 수 있다. 평균 응집체 직경은, 응집체 제조에 사용된 일차 질화붕소 입자의 평균 입자 크기보다 2배 이상 더 크고, 바람직하게는 3배 이상 더 크다. 평균 응집체 직경은, 응집체 제조에 사용된 일차 질화붕소 입자의 평균 입자 크기보다 10배 또는 또한 50배 이상 더 클 수 있다. 이방성 비늘형 질화붕소 응집체에서 일차 입자의 평균 입자 크기 (d_{50})는 50 μm 이하, 바람직하게는 30 μm 이하, 더욱 바람직하게는 15 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 10 μm 이하 및 특히 바람직하게는 6 μm 이하이다.

[0110] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 두께는 500 μm 이하, 바람직하게는 200 μm 이하, 더욱 바람직하게는 100 μm 이하, 더욱 더 바람직하게는 70 μm 이하, 훨씬 더 바람직하게는 50 μm 이하 및 특히 바람직하게는 35 μm 이하이다. 그러한 두께는 1 μm 이상, 더욱 바람직하게는 2 μm 이상, 더욱 더 바람직하게는 3 μm 이상 및 특히 바람직하게는 5 μm 이상이다. 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 두께는 디지털 정밀 게이지(digital precision gauge) 또는 주사 전자 현미경 (SEM)을 사용하여 결정될 수 있다.

[0111] 중형비, 즉, 비늘형 질화붕소 응집체의 응집체 두께에 대한 응집체 직경의 비는 주사 전자 현미경 (SEM) 이미지를 사용하여 응집체의 직경 및 두께를 측정함으로써 결정될 수 있다. 비늘형 응집체의 중형비는 1 초과의 값, 바람직하게는 2 이상의 값, 더욱 바람직하게는 3 이상의 값 및 특히 바람직하게는 5 이상의 값을 갖는다.

[0112] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체는 고밀도의 질화붕소 응집체이다.

[0113] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 내의 개별 소판-형상의 일차 질화붕소 입자들 사이에 직접 접촉 지점이 존재하며, 이는 일차 질화붕소 입자로부터 구축된, 질화붕소 응집체 내에 연속적인 열 전도 경로를 생성한다.

[0114] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에 사용되는 비늘형 질화붕소 응집체는 분쇄에 의해서가 아니라 형상화 공정에 의해서 직접적으로 생성된 표면들은 상부 및 하부 측에 갖는다. 이러한 표면들은 이하에서 "형상화된 표면"으로 지칭된다. 파쇄 또는 분쇄 단계에 의해 생성되는, 응집체의 거친 쪽의 표면 (파쇄된 표면)과는 대조적으로, 형상화된 표면은 비교적 매끄럽다. 비늘형 질화붕소 응집체의 표면은 실질적으로 평탄하며 (평면이며), 그의 상부 면과 하부 면은 실질적으로 서로 평행하다.

[0115] 비늘형 질화붕소 응집체의 총 표면적 중 형상화된 표면의 비율은 원형 밀면을 갖는 소판 또는 비늘 형상을 가정하면 (응집체의 직경이 그의 높이와 동일한 경우) 평균 33% 이상이고, 이는 정사각형 밀면을 갖는 소판 또는 비늘 형상을 가정하면 (응집체가 정육면체 형상인 경우) 마찬가지로 33% 이상이다. 높은 중형비를 갖는 비늘형 질화붕소 응집체의 경우, 총 표면적 중 형상화된 표면의 비율은 상당히 더 높으며; 3.0 초과의 중형비를 갖는 응집체의 경우, 비율은 전형적으로 60 내지 95%이고; 매우 큰 응집체의 경우, 비율은 훨씬 더 클 수 있다. 응집체를 등갈게 함으로써, 또는 심지어 스크리닝 또는 사이징 공정의 결과로서, 총 표면적 중 형상화된 표면의 비율이 감소될 수 있으며, 비율은 일반적으로 항상 10% 이상, 바람직하게는 20% 이상이다.

[0116] 총 표면적에 대한 형상화된 표면의 비는 SEM 이미지를 분석함으로써 결정될 수 있다. 그렇게 함에 있어서, 응집체 직경 및 두께에 대해 계산된 값을 사용하여 중형비를 결정한다. 이들 값으로부터, 총 표면적 중 형상화된 표면의 비율을 하기와 같이 계산한다:

[0117] $\text{형상화된 표면의 비율} [\%] = ((2 * \text{단부면}) / \text{총 표면적}) * 100$

[0118] 여기서,

[0119] $\text{단부면} = \text{응집체 직경} * \text{응집체 직경}$

[0120] $\text{총 표면적} = 2 * \text{단부면} + 4 * \text{측면}$

[0121] $\text{측면} = \text{응집체 두께} * \text{응집체 직경}$

[0122] 비늘형 질화붕소 응집체를 제조하기 위해서, 선택적으로 결합제 상 원료와 혼합된, 일차 질화붕소 입자 또는 비정질 질화붕소 형태의 질화붕소 공급원료 분말을 형상화 단계에서 비늘형 응집체로 가공하고, 후속하여 열처리 단계, 고온 어닐링(annealing)을 거치고, 필요하다면, 얻어진 비늘형 응집체를 후속하여 분쇄 및/또는 세분한다.

[0123] 비늘형 질화붕소 응집체는 건조하거나 축축한 분말 혼합물을 일축 프레싱(uniaxial pressing) 또는 롤러 압밀에

의해서 압축함으로써 형상화된다.

- [0124] 형상화를 위해, 질화붕소 공급원료 분말, 또는 질화붕소 공급원료 분말과 결합제 상 원료로 이루어진 분말 혼합물을 바람직하게는 2개의 대향 회전(counter-rotating) 롤러들 사이에서 압축한다. 롤러들 사이의 간극에서, 접촉력은 롤 간극 길이 1 cm당 0.5 kN 이상, 바람직하게는 1 kN 이상, 더욱 바람직하게는 2 kN 이상, 더욱 더 바람직하게는 3 kN 이상, 훨씬 더 바람직하게는 5 kN 이상, 가장 바람직하게는 7 kN 이상 및 특히 바람직하게는 10 kN 이상으로 설정한다. 롤러들의 접촉력은 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 밀도에 영향을 준다. 높은 접촉력에 의해, 질화붕소 원료의 일부가 비정질로 되고, 이는 후속 고온 어닐링 동안 재결정화된다. 미세구조화된 롤러를 사용할 때, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체가 또한 제조될 수 있다.
- [0125] 제조된 응집체의 잔류 수분은 추가적인 열처리 또는 질화 전에 대략 100℃에서 건조하여 제거할 수 있다.
- [0126] 비늘형 응집체로 압밀된 재료는 열처리 단계, 고온 어닐링을 거친다. 비늘형 응집체가 결합제 상 원료의 첨가 없이 오직 질화붕소 공급원료 분말, 즉, 일차 질화붕소 입자 또는 비정질 질화붕소만을 사용하여 제조되는 경우, 비늘형 응집체의 고온 어닐링은 1600℃ 이상, 바람직하게는 1800℃ 이상의 온도에서 수행된다.
- [0127] 필요하다면, 얻어지는 비늘형 응집체는 후속하여 또한 추가로 분쇄 및/또는 세분될 수 있다.
- [0128] 압밀 동안의 접촉력을 증가시키고 열처리 동안의 온도를 증가시킴으로써, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 안정성이 증가되며, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체를 사용하는 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물로부터 제조된 2 mm 두께의 얇은 플레이트에서 측정된 열전도율이 마찬가지로 증가된다.
- [0129] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체를 제조할 때, 추가의 첨가제가 없이 질화붕소 분말을 사용하고 이방성 비늘형 질화붕소 응집체로 가공할 수 있다. 바람직하게는 육방정 질화붕소 분말 및 다른 분말로 이루어진 혼합물을 사용하여서, 질화붕소와 제2 상으로 이루어진 이방성 비늘형 혼합 응집체 ("질화붕소 하이브리드 플레이크")를 제조한다. 이방성 비늘형 혼합 응집체를 제조하기 위해 육방정 질화붕소 분말에 추가로 첨가되는 분말은 무기 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료일 수 있다. 이방성 비늘형 혼합 응집체에서, 육방정 일차 질화붕소 입자들은 제2 상으로서의 무기 결합제 상에 의해 서로 연결된다.
- [0130] 이방성 비늘형 질화붕소 혼합 응집체의 무기 결합제 상은 하나 이상의 탄화물, 붕화물, 질화물, 산화물, 수산화물, 금속 또는 양이온을 포함한다.
- [0131] 결합제 상이 없는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체에서와 같이, 소관-형상의 일차 질화붕소 입자는 이러한 비늘형 혼합 응집체에서 무작위로 배향되지 않는다. 비늘형 질화붕소 혼합 응집체는 소관-형상의 일차 질화붕소 입자들을 포함하는데, 입자들의 소관 평면은 서로 평행하게 정렬된다. 소관-형상의 일차 질화붕소 입자들은 바람직하게는 일차 질화붕소 입자들의 소관 평면이 서로에 대해 실질적으로 평행하게 정렬되도록 하는 방식으로 함께 응집된다. 비늘형 질화붕소 혼합 응집체는 이방성 특성을 갖는데, 이러한 응집체 내의 소관-형상의 일차 질화붕소 입자들이 서로에 대해 무작위로 배향되지 않기 때문이다.
- [0132] 이방성 비늘형 질화붕소 혼합 응집체 (질화붕소 하이브리드 플레이크) 내의 결합제 상은 일차 질화붕소 입자들 사이에 위치하지만, 이는 또한, 적어도 부분적으로는, 질화붕소 하이브리드 플레이크의 표면 상에 위치할 수 있거나 또는 표면적의 대부분을 덮을 수 있다. 결합제 상은 질화붕소 하이브리드 플레이크 내의 일차 질화붕소 입자들을 결합시켜서, 결합제가 없는 응집체와 비교하여 기계적으로 더 안정한 응집체를 얻을 수 있게 한다.
- [0133] 이방성 비늘형 질화붕소 혼합 응집체는 각각의 경우에 비늘형 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로 바람직하게는 1% 이상, 더욱 바람직하게는 5% 이상, 더욱 더 바람직하게는 10% 이상, 훨씬 더 바람직하게는 20% 이상 및 특히 바람직하게는 30% 이상의 결합제 상 비율을 갖는다.
- [0134] 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체의 고온 어닐링은 1000℃ 이상의 온도에서 수행된다.
- [0135] 추가로 바람직한 실시 형태에서, 이방성 비늘형 혼합 응집체의 무기 결합제 상은 하나 이상의 질화물 및/또는 산질화물을 포함한다. 질화물 또는 산질화물은 바람직하게는 알루미늄 원소, 규소 원소, 티타늄 원소 및 붕소 원소의 화합물이다.
- [0136] 이러한 질화붕소 혼합 응집체는 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체, 또는 질화물 결합제 상을 갖는 이방성 질화붕소 응집체로 또한 지칭될 수 있다.
- [0137] 결합제 상에 함유된 질화물 및 산질화물은 바람직하게는 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si₃N₄) 및/또는 질화붕소 (BN), 더욱 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄

및/또는 질화규소, 더욱 더 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄이다. 결합제 상은 특히 바람직하게는 질화알루미늄을 함유한다.

[0138] 결합제 상의 질화물 및 산질화물은 비정질, 부분 결정질 또는 결정질일 수 있다. 결합제 상은 바람직하게는 결정질인데, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 및 본 발명에 따른 구성 부품에서 더 높은 열전도율 값을 달성할 수 있게 하기 때문이다.

[0139] 질화물 및/또는 산질화물을 함유하는 결합제 상은, 예를 들어, 산화붕소 (B_2O_3), 산화알루미늄 (Al_2O_3), 이산화규소 (SiO_2), 이산화티타늄 (TiO_2), 산화이트륨 (Y_2O_3), 산화마그네슘 (MgO), 산화칼슘 (CaO) 및 희토류 금속 산화물과 같은 산화물 상을 추가로 또한 함유할 수 있다.

[0140] 게다가, 결합제 상은 붕산염, 예를 들어 붕산알루미늄 또는 붕산칼슘을 추가로 또한 함유할 수 있다. 추가로, 결합제 상은 불순물, 예를 들어, 탄소, 금속 불순물, 원소 붕소, 붕화물, 탄화붕소, 또는 예를 들어, 탄화규소와 같은 다른 탄화물을 또한 함유할 수 있다.

[0141] 결합제 상 중의 질화물 및 산질화물의 비율은, 총 결합제 상을 기준으로, 바람직하게는 50 중량% 이상, 및 특히 바람직하게는 80 중량% 이상이다.

[0142] 결합제 상은 바람직하게는 질화알루미늄, 질화규소 또는 질화티타늄 또는 이들의 혼합물을, 총 결합제 상을 기준으로 50 중량% 이상의 비율로 함유한다. 결합제 상은 특히 바람직하게는 질화알루미늄을, 총 결합제 상을 기준으로 바람직하게는 90 중량% 이상의 비율로 함유한다.

[0143] 금속 분말이 바람직하게는 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료로서 사용되며, 이러한 금속 분말은 직접적인 질화에 의해서 상응하는 금속 질화물 또는 산질화물, 또는 금속 질화물 및 산질화물의 혼합물로 전환된다. 사용되는 금속 분말은 바람직하게는 알루미늄, 규소 또는 티타늄 분말 또는 이들의 혼합물이다. 특히 바람직하게는 알루미늄 분말이 사용된다. 질화 단계에서, 금속은 상응하는 금속 질화물로 전환된다. 산질화물, 또는 금속 질화물 및 산질화물의 혼합물이 질화 동안 또한 형성될 수 있다.

[0144] 환원제와 조합된 금속 화합물이 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료로서 또한 사용될 수 있으며, 이때 질화물 결합제 상은 환원-질화를 통해 제조된다. 사용되는 금속 화합물은 바람직하게는 알루미늄 원소, 규소 원소 및 티타늄 원소로부터의 화합물, 바람직하게는 예를 들어, 산화알루미늄 (Al_2O_3), 수산화알루미늄 ($Al(OH)_3$), 베마이트 ($AlOOH$), 이산화규소 (SiO_2) 및 이산화티타늄 (TiO_2)과 같은 산화물 및/또는 수산화물이다. 사용되는 금속 화합물은 또한 붕산염, 예를 들어 붕산알루미늄일 수 있다. 탄소 및 수소뿐만 아니라, 예를 들어 폴리비닐 부티랄 (PVB), 멜라민 및 메탄과 같은 유기 화합물이 환원제로서 사용될 수 있다. 예를 들어 수소 또는 메탄과 같은 가스상 물질이 환원제로서 사용되는 경우, 이러한 물질은 질화 분위기에 첨가된다. 또한, 환원에 필요한 환원제가 금속 화합물에 이미 존재할 수 있으며, 따라서, 예를 들어 알루미늄 아이소프로폭사이드, 테트라에틸오르토실리케이트 또는 티타늄 아이소프로폭사이드를 결합제 원료로서 사용하는 경우, 추가적인 환원제의 사용이 불필요하다. 질화 단계에서, 금속 화합물은 상응하는 금속 질화물로 전환된다. 질화 동안 산질화물, 또는 금속 질화물 및 산질화물의 혼합물이 또한 형성될 수 있으며; 마찬가지로, 결합제 상은 잔류 미반응 산화물을 여전히 함유할 수 있다.

[0145] 질화붕소를 제조하기 위한 반응물은 또한 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하기 위한 결합제 상 원료로서 사용될 수 있다. 질화붕소를 제조하기 위한 반응물은, 예를 들어 붕산 (H_3BO_3) 및 산화붕소 (B_2O_3)와 같은 산화물성 붕소 공급원을, 예를 들어 탄소 또는 수소 또는 유기 화합물, 예를 들어 폴리비닐 알코올 (PVA), 폴리비닐 부티랄 (PVB), 멜라민 및 메탄과 같은 환원제와 조합하여 함유할 수 있다. 예를 들어 수소 또는 메탄과 같은 가스상 물질이 환원제로서 사용되는 경우, 이러한 물질은 질화 분위기에 첨가된다. 원소 붕소, 탄화붕소 및 트라이메틸 보레이트와 같은 실질적으로 산소가 없는 붕소 공급원이 또한 질화붕소를 생성하기 위한 반응물로서 사용될 수 있다. 질화 단계에서, 이러한 원료가 육방정 질화붕소로 전환된다.

[0146] 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 질화물 결합제 상을 제조하는 데 사용되는 결합제 상 원료는 또한 질화 분위기에서의 열처리 동안 응고되는 질화물 재료일 수 있다. 질화물 재료는 알루미늄 또는 규소의 질화물 및/또는 산질화물 화합물일 수 있지만, 질화티타늄 및 희토류 질화물이 또한 사용될 수 있으며; 마찬가지로, 사이알론으로 이루어진 군으로부터의 화합물이 사용될 수 있다. 예를 들어 산화이트륨, 산화알루미늄, 산화마그

내습, 산화칼슘, 산화규소 및 회토류 산화물과 같은 액체 상이 소결 보조제로서 사용될 수 있다.

- [0147] 열거된 상이한 결합제 상 원료들의 혼합물을 사용하는 것이 또한 가능하다.
- [0148] 옥방정 질화붕소, 비정질 질화붕소, 부분 결정질 질화붕소 및 이들의 혼합물이 이방성 비늘형 질화붕소 응집체를 제조하기 위한 질화붕소 공급원료 분말로서 사용될 수 있다.
- [0149] 사용되는 질화붕소 분말의 평균 입자 크기 d_{50} 은 0.5 내지 50 μm , 바람직하게는 0.5 내지 15 μm , 더욱 바람직하게는 0.5 내지 5 μm 일 수 있다. 예를 들어, 평균 입자 크기가 1 μm , 3 μm , 6 μm , 9 μm 및 15 μm 인 옥방정 질화붕소 분말이 사용될 수 있지만, 최대 50 μm 의 더 큰 평균 입자 크기가 또한 가능하다. 상이한 입자 크기를 갖는 상이한 옥방정 질화붕소 분말의 혼합물이 마찬가지로 사용될 수 있다.
- [0150] 사용되는 질화붕소 분말의 평균 입자 크기 (d_{50})의 측정은 전형적으로 레이저 회절(습식 측정, 마스터사이즈 2000, 몰번)에 의해 수행된다.
- [0151] B_2O_3 이 없는 질화붕소 분말, 및 최대 0.5 중량%의 더 낮은 B_2O_3 함량을 갖는 질화붕소 분말이 사용될 수 있지만, 최대 10 중량% 이상의 더 높은 B_2O_3 함량을 갖는 질화붕소 분말이 또한 사용될 수 있다. 분말형 또는 과립형 질화붕소의 혼합물을 사용하는 것이 또한 가능하다. 결합제 상 원료는 고체 또는 액체 또는 페이스트형 형태로 존재할 수 있다.
- [0152] 질화붕소 공급원료 분말 및 결합제 상 원료의 혼합은, 예를 들어, V-혼합기, 드럼 후프 혼합기, 진동 튜브 밀 또는 아이리히 혼합기에서, 혼합 드럼에서 수행될 수 있다. 후속 밀링 단계 (예를 들어, 크로스비터 밀, 텀블링 밀, 교반기 비드 밀)에서 균질성이 추가로 증가될 수 있다. 분말 혼합물은 건조하거나 축축할 수 있다. 마찬가지로, 프레싱 보조제, 및 필요하다면, 윤활 보조제를 첨가할 수 있다. 예를 들어 후속하는 과립 제조가 분무-건조 또는 빌드-업 과립화를 통해 수행되는 경우, 혼합은 또한 습윤 상태로 수행될 수 있다.
- [0153] 비늘형 응집체로 압밀된 재료는 후속하여 질화 분위기에서 1600°C 이상, 바람직하게는 1800°C 이상의 온도에서 고온 어닐링을 거친다. 질화 분위기는 바람직하게는 질소 및/또는 암모니아를 포함한다. 질화 분위기는 바람직하게는 아르곤을 추가로 함유한다. 최대 온도를 달성한 후에, 최대 수 시간 또는 수 일의 유지 시간이 시작될 수 있다. 열처리하는 연속식 방법 또는 배치식 방법으로 수행될 수 있다.
- [0154] 질화 분위기에서의 열처리로 인해, 질화물 결합제 상이 제2 상으로서 형성되며, 이는 일차 질화붕소 입자들끼리 서로 결합한다. 질화 단계로 인해, 일차 입자의 결정화도가 증가할 수 있으며, 이는 일차 입자 성장을 수반한다.
- [0155] 이방성 질화물-결합된 질화붕소 혼합 응집체 내의 결합제에서, 질화 동안 반응하지 않은 잔여 원료는 바람직하게는 10% 이하, 더욱 바람직하게는 5% 이하, 더욱 더 바람직하게는 3% 이하 및 특히 바람직하게는 2% 이하이다. 산소에 의한 오염은 바람직하게는 10% 이하, 더욱 바람직하게는 5% 이하, 더욱 더 바람직하게는 2% 이하 및 특히 바람직하게는 1% 이하이다.
- [0156] 고온 처리 전에, 비늘형 응집체로 압밀된 재료는 바람직하게는 700°C 이상의 온도에서 질화 분위기에서 추가의 열처리를 거치며, 이러한 제1 열처리의 온도는 고온 처리의 온도보다 낮다. 이러한 처음의 질화의 질화 분위기는 바람직하게는 질소 및/또는 암모니아를 포함한다. 질화 분위기는 바람직하게는 아르곤을 추가로 함유한다.
- [0157] 열처리의 온도 및 지속 시간을 증가시킴으로써, 비늘형 질화붕소 혼합 응집체에 함유된 일차 질화붕소 입자에서 결정화도가 증가하며, 존재하는 일차 질화붕소 입자의 산소 함량 및 비표면적이 감소한다.
- [0158] 비늘형 질화붕소 응집체의 목표 응집체 크기를 달성하기 위해서, 스크리닝, 스크린 세분 및 시프팅과 같은 통상적인 단계가 수행될 수 있다. 미세분이 함유된 경우, 먼저 제거될 수 있다. 스크리닝의 대안으로서, 응집체의 규정된 분쇄는 또한 체 그레이터, 분급기 밀, 구조화된 롤러 파쇄기 또는 커팅 휠을 사용하여 수행될 수 있다. 예를 들어, 볼 밀에서의 그라인딩이 또한 가능하다. 수 밀리미터 내지 수 센티미터 크기의 응집체가, 추가의 공정 단계에서, 규정된 응집체 크기로 가공된다. 이를 위하여, 예를 들어, 상이한 메시 폭을 갖는 표준 시판용 스크린, 및 진동 스크린에서의 체질 보조제(sieving aid)가 사용될 수 있다. 다단계 체질/분쇄 체질 공정이 유리한 것으로 입증되었다.
- [0159] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체는, 그의 제조 후에, 추가의 처리를 거칠 수 있다. 이러한 경우에, 예를 들어, 하기의 가능한 처리들 중 하나 이상이 수행될 수 있다:

- [0160] - 스팀 처리
- [0161] - 실온에서 또는 열의 영향 하에서, 캐리어 또는 반응 가스를 사용한, 실란, 티타네이트 또는 다른 유기금속 화합물에 의한 표면 개질. 이러한 표면 개질은 또한 질화물-결합된 비늘형 응집체의 경우에 질화물 결합제 상의 내가수분해성을 증가시킨다.
- [0162] - 중합체, 예를 들어 폴리에틸렌 글리콜 (PEG), 폴리비닐 알코올 (PVA), 폴리비닐 부티랄 (PVB), 폴리비닐 피롤리돈 (PVP), 공중합체, 아크릴레이트, 오일 또는 카르복실산에 의한 표면 개질.
- [0163] - 졸-겔 시스템, 예를 들어 베마이트 졸 또는 SiO_2 졸에 의한, 또는 수용성 유리 또는 나노입자 또는 표면-개질된 나노입자 또는 이들의 혼합물에 의한 침윤.
- [0164] - 수용성 또는 에탄올-용해성 중합체에 의한 침윤. 질화붕소 응집체는, 예를 들어, 실리콘, 에폭시 또는 폴리우레탄 수지와 같은 수지로 침윤될 수 있으며, 수지는 배합 전에 또는 중에 경질화제에 의해 경질화될 수 있거나 또는 열-경질화될 수 있다.
- [0165] - 질화물-결합된 비늘형 응집체의 경우에, 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 표면 산화를 야기하는, 산소 하에서의 열처리. 예를 들어, 표면 TiO_2 를 갖는 응집체는 질화티타늄 (TiN)을 함유하는 결합제 상을 사용하여 500°C 초과에서 공기 중 산화에 의해 제조될 수 있고; 표면 SiO_2 는 질화규소 (Si_3N_4)를 함유하는 결합제 상을 사용하여 제조될 수 있고, 표면 산화알루미늄 (Al_2O_3)은 질화알루미늄 (AlN)을 함유하는 결합제 상을 사용하여 제조될 수 있다. AlN 을 결합제 상으로서 함유하는 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 경우에, 공기 중 열처리는, 바람직하게는 500°C 이상의 온도에서, 더욱 바람직하게는 700°C 내지 1200°C 의 온도에서, 및 특히 바람직하게는 700°C 내지 1000°C 의 온도에서 수행될 수 있다.
- [0166] 열거된 표면 처리는 또한 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체와, 예를 들어, 일차 질화붕소 입자와 같은 다른 질화붕소 충전제와의 혼합물에 대해 수행될 수 있다.
- [0167] 또한, 열거된 처리들 중 몇몇을 임의의 순서로 조합할 수 있다. 예를 들어, 처리는 유동층 방법으로 수행될 수 있다.
- [0168] 열거된 처리를 사용하여, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 내의 비늘형 질화붕소 응집체에 대한 중합체 매트릭스의 개선된 커플링을 달성할 수 있다.
- [0169] 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체는 탁월한 기계적 안정성을 나타낸다. 질화붕소 응집체는 (가능하다면, 단지 최소한의 해체만으로) 충전, 수송, 투입, 배합, 즉, 중합체/질화붕소 배합물로의 질화붕소 응집체의 추가적인 가공, 및 사출 성형에 의한 후속 성형을 견뎌내야만 하기 때문에, 질화붕소 응집체의 기계적 안정성이 중요하다. 배합 동안 질화붕소 응집체가 해체된다면, 중합체/질화붕소 배합물의 유동학적 특성이 악화되고 그러한 배합물로부터 제조된 구성 부품에서, 특히 사출 성형된 얇은 플레이트에서 평면 통과 방향의 열전도율이 감소하는 위험이 존재한다. 일차 질화붕소 입자를 사용하여 제조된 중합체 배합물에 필적하는 수준까지 평면 통과 방향의 열전도율이 낮아지는 정도로 질화붕소 응집체가 분해하는 위험이 있다.
- [0170] 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 및 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 경우, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물에서의 열전도율은, 소판-형상의 일차 질화붕소 입자를 사용하여 제조된 중합체/질화붕소 배합물에서와 같이 방향에 의존적이지 않다. 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 및 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체를 사용하여 제조된 본 발명에 따른 질화붕소 중합체 배합물의 평면 통과 열전도율은 대략 동일한 수준이지만, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 및 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체를 사용하여 제조된 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물의 평면 내 열전도율은, 동일한 화학 조성을 갖는 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체를 사용하여 제조된 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물보다 현저히 더 크다. 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 및 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체는 다수의 큰 크기의 중합체 용융물과의 배합 공정을 견디기에 충분한 강도를 갖는다.
- [0171] 놀랍게도, 응집되지 않은 소판-형상의 질화붕소의 사용과 비교하여, 달리 필적하는 가공 조건 하에서, 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체의 평면 통과 열전도율은, 중합체/질화붕소 배합물에서 30 부피%의 충전제 로딩에서 50% 이상만큼 증가될 수 있고 40 부피%의 충전제 로딩에서 2배 초과로 증가될 수 있다. 이러한 증가가 이축 압출기에서의 거친 배합을 사용하고 얇은 플레이트를 사출 성형할 때 또한 달성되었다는 것이 특히 놀라운 것이다.

- [0172] 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체, 및 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체는 배합 및 벽 두께가 약 2 mm인 얇은 플레이트의 사출 성형에 사용하기에 충분히 안정하다. 얇은 플레이트의 벽 두께가 추가로 감소되어 응집체의 훨씬 더 높은 안정성이 필요한 경우, 각각의 경우에 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체 및 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체 내의 결합제 상의 비율을 증가시킴으로써 안정성 요건에 맞게 조정될 수 있다.
- [0173] 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체 및 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체의 안정성을 조정하거나 증가시킴으로써, 마모성 제2 충전제를 갖는 혼합물이 또한 가능한 것이 또한 유리하다. 질화붕소 응집체와 마모성 제2 충전제의 혼합물에서, 통상적인 질화붕소 응집체는 분해된다. 본 발명에 따른 사용되는 질화붕소 응집체에서, 분해는, 예를 들어 이방성 비와 같은, 유리한 열전도율 특성이 유지되는 정도로 감소된다.
- [0174] 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체 및 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체의 안정성은, 특히, 충전제 함량이 높은 경우 - 열가소성 가공 동안의 용융물 점도가 높고 따라서 충전제의 높은 전단이 발생함 - 에, 결합제 상의 비율을 증가시킴으로써 조정될 수 있고, 따라서 높은 충전제 함량 또는 높은 충전제 혼합물 함량의 가공이 가능함이 더욱 유리하다.
- [0175] 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체, 이방성 비늘형 질화붕소 응집체 및 무기 결합제 상을 갖는 비늘형 질화붕소 응집체의 안정성을 조정할 수 있기 때문에, 열전도성 충전제의 마모와 각각의 응용에 적합한 안정성 사이의 양호한 타협점에 도달할 수 있다.
- [0176] 추가의 바람직한 실시 형태에서, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물은, 열전도성 충전제로서의 질화붕소 응집체에 더하여, 질화붕소와 상이하며 열전도율을 증가시키는 열전도성 충전제로서 하나 이상의 충전제를 추가로 또한 함유할 수 있다. 이러한 추가적인 충전제는 이하에서 제2 충전제로 또한 지칭된다.
- [0177] 그러한 제2 충전제의 열전도율은 전형적으로 $5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 이상, 바람직하게는 $8 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 이상이다.
- [0178] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중 질화붕소 응집체 및 제2 충전제의 전체 비율은, 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로, 바람직하게는 20 부피% 이상, 및 더욱 바람직하게는 30 부피% 이상이다. 바람직하게는, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중 질화붕소 응집체 및 제2 충전제의 전체 비율은, 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로, 70 부피% 이하, 더욱 바람직하게는 60 부피% 이하이다. 특히 바람직하게는, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중 질화붕소 응집체 및 제2 충전제의 전체 비율은, 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로, 50 부피% 이하이다.
- [0179] 바람직하게는 알루미늄, 규소, 티타늄, 구리, 철 및 청동 분말 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는, 분말 금속이 제2 충전제로서 사용될 수 있다.
- [0180] 흑연, 팽창된 흑연 또는 카본 블랙 형태의 탄소가 또한 제2 충전제로서 사용될 수 있으며, 팽창된 흑연이 특히 바람직하다.
- [0181] 게다가, 세라믹 충전제, 예를 들어, 바람직하게는 산화알루미늄, 산화마그네슘, 질화알루미늄, 이산화규소, 탄화규소, 질화규소 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는 산화물, 질화물 및 탄화물, 특히 바람직하게는 산화알루미늄, 산화마그네슘 및/또는 질화알루미늄이 또한 제2 충전제로서 사용될 수 있다.
- [0182] 바람직하게는 알루미늄실리케이트, 알루미늄 실리케이트, 마그네슘 실리케이트 ($2\text{MgO}\cdot\text{SiO}_2$), 마그네슘 알루미늄이트 ($\text{MgO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$), 브루사이트(brucite) (수산화마그네슘, $\text{Mg}(\text{OH})_2$), 석영, 크리스토팔라이트(cristobalite), 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는, 광물 충전제가 또한 제2 충전제로서 사용될 수 있다. 키아나이트(kyanite, Al_2SiO_5) 및/또는 몰라이트(mullite, $3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$)가, 예를 들어, 알루미늄실리케이트 또는 알루미늄 실리케이트로서 사용될 수 있다.
- [0183] 제2 충전제들의 조합이 또한 가능하다. 열전도성 충전제로서 이방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체, 알루미늄실리케이트 및 팽창된 흑연의 조합이 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물에서 특히 유리한 것으로 입증되었다.
- [0184] 제2 충전제는 미립자 형태로 존재하는 것이 바람직하다. 제2 충전제 입자의 형상은 불규칙형, 덩어리형 또는 구형, 또는 소판-형상일 수 있다. 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물 중의 소판-형상의 제2 충전제의 비율은 바람직하게는 10 부피% 이하, 더욱 바람직하게는 5 부피% 이하이다.

- [0185] 제2 충전제는 바람직하게는 입자 직경 또는 소관 직경이 0.5 μm 이상, 더욱 바람직하게는 1 μm 이상, 더욱 바람직하게는 2 μm 이상, 및 특히 바람직하게는 5 μm 이상이다.
- [0186] 제2 충전제는 분말, 바람직하게는 응집된 분말로서 존재한다. 제2 충전제의 응집은, 예를 들어 아이리히 혼합기에서, 롤러 압밀 또는 빌드-업 과립화를 통해 수행될 수 있다. PVA 용액이 과립화제로서 사용될 수 있다. 배합 동안, 제2 충전제 과립은 바람직하게는 투입 전에 압출기에서 질화붕소 충전제와 혼합된다. 제2 충전제 과립은, 제2 충전제 과립과 질화붕소 충전제를 혼합하기 전에 건조된다. 제2 충전제의 과립화는 배합 동안의 균일한 투입을 용이하게 한다.
- [0187] 질화붕소 응집체와 제2 충전제의 충전제 조합을 사용하는 경우, 등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체 및/또는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체가 바람직하게는 제2 충전제와의 조합으로 사용된다. 이방성 비늘형 질화붕소 응집체와 제2 충전제로 이루어진 충전제 혼합물의 사용이 바람직하다.
- [0188] 전체 부피 중 동일한 비율의 충전제를 사용하는 각각의 경우에, 비늘형 질화붕소 응집체와 제2 충전제의 충전제 조합을 갖는 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물의 열전도율은 제2 충전제만 단독으로 사용하여 제조된 중합체 배합물에서보다 높다.
- [0189] 놀랍게도, 질화붕소 응집체, 특히 바람직한 이방성 비늘형 질화붕소 응집체와 제2 충전제의 조합은, 충전제 조합을 사용하여 제조된 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물의 달성된 열전도율 값이 상응하는 비율의 질화붕소 응집체 및 제2 충전제로 개별적으로 충전된 중합체 재료에 대한 열전도율 값 (각각의 경우에 충전되지 않은 베이스 중합체의 열전도율을 제함)을 합친 경우에 예상되는 것보다 더 높음을 나타낸다. 이는 평면 내 열전도율 및 평면 통과 열전도율 둘 모두에 해당한다.
- [0190] 질화붕소 응집체에 더하여, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물은 또한 일차 질화붕소 입자를 함유할 수 있다. 마찬가지로, 일차 질화붕소 입자는 질화붕소 응집체와 제2 충전제의 충전제 조합을 사용하여 제조되는 중합체/질화붕소 배합물에서 추가로 사용될 수 있다. 사용되는 일차 질화붕소 입자는 질화붕소 분말일 수 있지만, 또한 배합 동안 일차 입자로 대부분 또는 완전히 분해되는, 예를 들어, 분무 건조된 질화붕소 응집체와 같은 덜 안정한 질화붕소 응집체일 수 있다. 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물 중의 추가적인 일차 질화붕소 입자의 비율은 바람직하게는 20 부피% 이하, 특히 바람직하게는 10 부피% 이하이다.
- [0191] 질화붕소 응집체, 또는 질화붕소 응집체와 5 W/m²K 이상의 열전도율을 갖는 제2 충전제에 더하여, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물은, 예를 들어, 활석과 같이 5 W/m²K 미만의 더 낮은 열전도율을 갖는, 질화붕소와 상이한 추가적인 충전제를 또한 함유할 수 있다.
- [0192] 열전도성 충전제에 더하여, 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물은, 예를 들어, 기계적 또는 전기적 특성 또는 열팽창계수를 조정하는 것과 같은 다른 기능을 하는 추가적인 첨가제 및 충전제를 또한 함유할 수 있다. 충전제는, 예를 들어, 덩어리형, 구형, 소관-형상, 섬유질 입자, 또는 불규칙한 모폴로지를 갖는 입자로서 존재할 수 있다.
- [0193] 본 발명에 따른 구성 부품 및 중합체/질화붕소 배합물을 제조하기 위해서, 상이한 비율의 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체 또는 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 혼합물이 또한 사용될 수 있다. 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체와 이방성 비늘형 질화붕소 응집체의 혼합물이 또한 가능하다.
- [0194] 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물은 임의의 일반적인 배합 집합체(compounding aggregate)를 사용하여, 배합에 의해 제조될 수 있다. 이는, 특히, 단축 압출기, 이축 압출기, 접선형 또는 교합형 동방향 회전 또는 대향 회전 유전형 롤러 압출기, 그루브드 배럴 압출기(grooved barrel extruder), 핀-타입 압출기(pin-type extruder), 캘린더링(calendering), 부스 공동 혼련기, 전단 롤러 압출기 및 사출 형성기 및 반응기를 포함한다. 이축 압출기에서의 배합이 바람직하다.
- [0195] 배합에 사용되는 중합체는 분말 형태로 또는 과립 형태로 존재할 수 있다. 배합 집합체에 혼합물이 공급되기 전에, 중합체는 건조 형태로 질화붕소 응집체와, 또는 질화붕소 응집체 및 추가의 충전제와 예비 혼합될 수 있다. 대안적으로, 질화붕소 응집체 및 선택적인 추가의 충전제를 중합체 용융물에 첨가하는 것은, 충전제와 중합체를 먼저 예비 혼합하지 않고서, 측면 공급기를 통해 수행될 수 있다. 게다가, 마스터 배치, 즉, 최종 응용에서보다 충전제 함량이 높은 중합체 배합물을 먼저 제조한 다음, 예를 들어, 이축 압출기에서 중합체와 균질화시킬 수 있다.
- [0196] 배합 집합체에서 균질화시킨 후에, 충전된 중합체 용융물을 과립화시킨다. 중합체/질화붕소 배합물은 예를 들

어 스트랜드 펠렛화(strand pelletizing), 수중 과립화(underwater granulation), 열간 절단(hot cut) 또는 냉간 절단(cold cut) 펠렛화에 의해 과립화될 수 있다. 배합물을 가공하는 방법들의 조합이 또한 가능하다. 과립 형태의 얻어진 중합체/질화붕소 배합물을, 예를 들어, 사출 성형과 같은 형상화 방법을 통해 추가로 가공하여서 구성 부품을 형성할 수 있다.

[0197] 본 발명에 따른 구성 부품은 중합체/질화붕소 배합물을 열가소성 가공하여 제조된다. 중합체/질화붕소 배합물은, 예를 들어 사출 성형, 압출, 캘린더링, 또는 사출 스탬핑(injection stamping)에 의해, 바람직하게는 사출 성형 또는 압출에 의해 임의의 원하는 형상으로 형상화될 수 있다. 사출 성형에 의한 가공이 특히 바람직하다. 이를 위해서, 예를 들어, 배합물 과립, 또는 마스터 배치로부터의 배합물 과립 혼합물을 유압식으로 또는 전기 기계식으로 구동되는 펠렛화 유닛에서 용융시킬 수 있으며, 필요하다면, 또한 노즐을 빠져나갈 때까지 추가적인 충전제 또는 중합체와 균질화시킬 수 있다. 후속 주입 단계 동안, 용융물은 사출 성형기의 폐쇄된 주형 내로 주입될 수 있다. 그렇게 함에 있어서, 고전적인 주입 주형 및 핫 러너 시스템(hot runner system)을 갖는 주형들 모두가 사용될 수 있다. 공동이 완전히 채워진 후에, 구성 부품이 완전히 응고될 때까지 홀딩 압력을 일정하게 유지할 수 있다. 냉각 시간이 경과한 후에, 주형을 개방하고 구성 부품을 배출시킬 수 있다. 배출은, 결국, 사출 성형기의 배출 유닛에 의해, 또는 로봇 팔과 같은 다른 제거 방식에 의해 수행될 수 있다.

[0198] 열가소성 가공 동안, 즉, 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물의 제조 동안 또는 본 발명에 따른 구성 부품의 사출 성형 동안, 질화물-결합된 등방성 질화붕소 응집체의 일부분이 배합 동안 또는 사출 성형 동안의 전단에 의해 일차 입자 또는 응집체 단편으로 분해될 수 있지만, 배합물의 유리한 특성을 잃지 않는다.

[0199] 본 발명에 따른 구성 부품은 냉각될 구성 부품 또는 조립체, 바람직하게는 전자 구성 부품 또는 조립체의 방열을 위해 사용된다.

[0200] 본 발명에 따른 구성 부품은 박벽화된 부분을 포함하며, 그를 통해, 냉각될 구성 부품 또는 조립체의 열이 소산될 수 있다. 구성 부품의 박벽화된 부분은 두께가 3 mm 이하, 바람직하게는 2 mm 이하이다. 본 발명에 따른 구성 부품은, 예를 들어, 형상화 방법으로서의 사출 성형 또는 압출에 의해서, 예를 들어, 두께가 3 mm 이하, 바람직하게는 2 mm 이하인 얇은 플레이트로서 존재할 수 있다. 본 발명에 따른 구성 부품은 또한 전기 전도성 또는 전기 절연성일 수 있다. 형상화 동안 또는 후속 가공 단계에서, 얇은 플레이트 형태의 전도성 및 비전도성 층으로 이루어진 라미네이트(laminate)를 제조하는 것이 또한 가능하며, 여기서, 적어도 얇은 플레이트의 전기 절연 층은 본 발명에 따른 중합체/질화붕소 배합물을 사용하여 제조되었다.

[0201] 예를 들어 사출 성형에 의한 형상화 후에, 본 발명에 따른 구성 부품에는 코팅이 또한 제공될 수 있으며; 예를 들어, 금속화될 수 있다. 전도체 경로를 제공하는 것이 또한 가능하다.

[0202] 본 발명에 따른 구성 부품은 균일하거나 불균일한 벽 두께를 갖는 평탄하거나 굴곡진 플레이트로서 존재할 수 있다. 본 발명에 따른 구성 부품의 표면은 매끄럽거나 텍스처화될 수 있다.

[0203] 본 발명에 따른 구성 부품은 전자 구성 부품을 위한 캐리어 플레이트로서 역할을 할 수 있거나, 또는 하나의 구성 부품으로부터 다른 구성 부품으로 열을 전달할 수 있다. 본 발명에 따른 구성 부품은 필름 또는 박벽화된 튜브로서 또한 존재할 수 있다. 본 발명에 따른 구성 부품은 실질적으로 박벽화된 하우징, 마운팅 또는 연결 요소 또는 튜브의 박벽화된 필수 부품으로서 또한 존재할 수 있다. 더욱이, 본 발명에 따른 구성 부품은 냉각 요소, 하우징, 마운팅, 연결 요소 또는 튜브의 일 부품으로서의 냉각 핀(cooling fin)으로서 존재할 수 있으며, 여기서 마운팅은 예를 들어, 램프 소켓(lamp socket)일 수 있다. 더 복잡한 구성 부품에서, 본 발명에 따른 구성 부품은, 플레이트로서, 플레이트들의 스택의 일부일 수 있으며, 이 플레이트들의 스택 내의 플레이트는 냉각 핀으로서 역할을 할 수 있다.

[0204] 하기 항목들은 본 발명 및 바람직한 실시 형태를 설명하고자 하는 것이다.

[0205] 1. 적어도 하나의 부분에서 3 mm 이하의 벽 두께를 갖는 구성 부품으로서, 구성 부품은 중합체/질화붕소 배합물의 열가소성 가공에 의해 제조되고, 중합체/질화붕소 배합물은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함하는, 구성 부품.

[0206] 2. 항목 1에 있어서, 구성 부품의 평면 통과 열전도율은 1 W/m*K 이상, 바람직하게는 1.2 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.5 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 1.8 W/m*K 이상이고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형태의 사출 성형된 샘플에 대해 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.

[0207] 3. 항목 1 또는 항목 2에 있어서, 구성 부품의 평면 내 열전도율은 1.5 W/m*K 이상, 바람직하게는 1.8 W/m*K 이

상, 더욱 바람직하게는 2.2 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 2.7 W/m*K 이상이고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형태의 사출 성형된 샘플에 대해 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.

- [0208] 4. 항목 2 및/또는 항목 3에 있어서, 평면 통과 열전도율에 대한 평면 내 열전도율의 이방성 비는 1.5 이상 4 이하, 바람직하게는 1.5 이상 3.5 이하, 더욱 더 바람직하게는 1.5 이상 3.0 이하, 및 특히 바람직하게는 1.5 이상 2.5 이하인, 구성 부품.
- [0209] 5. 항목 1 내지 항목 4 중 어느 한 항목에 있어서, 구성 부품의 평면 통과 열전도율은 열전도성 충전제가 없는 중합체 재료의 열전도율보다 0.8 W/m*K 이상, 바람직하게는 1 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 1.3 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 1.6 W/m*K 이상 더 크고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형태의 사출 성형된 샘플에 대해 평면 통과 방향에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.
- [0210] 6. 항목 1 내지 항목 5 중 어느 한 항목에 있어서, 구성 부품의 평면 내 열전도율은 열전도성 충전제가 없는 중합체 재료의 열전도율보다 1.3 W/m*K 이상, 바람직하게는 1.6 W/m*K 이상, 더욱 바람직하게는 2.0 W/m*K 이상, 및 특히 바람직하게는 2.5 W/m*K 이상 더 크고, 열전도율은 두께가 2 mm인 디스크 형태의 사출 성형된 샘플에 대해 평면 내 방향에서 DIN EN ISO 22007-4에 따라 측정되는, 구성 부품.
- [0211] 7. 항목 1 내지 항목 6 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체의 비율은, 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 5 부피% 이상, 바람직하게는 10 부피% 이상, 더욱 바람직하게는 20 부피% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 부피% 이상인, 구성 부품.
- [0212] 8. 항목 1 내지 항목 7 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체의 비율은, 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 70 부피% 이하, 바람직하게는 60 부피% 이하, 및 특히 바람직하게는 50 부피% 이하인, 구성 부품.
- [0213] 9. 항목 1 내지 항목 8 중 어느 한 항목에 있어서, 중합체 재료는 열가소성 재료인, 폴리아미드 (PA), 폴리페닐렌 설파이드 (PPS), 폴리카르보네이트 (PC), 폴리프로필렌 (PP), 열가소성 탄성중합체 (TPE), 열가소성 폴리우레탄 탄성중합체 (TPU), 폴리에테르 에테르 케톤 (PEEK), 액정 중합체 (LCP), 폴리옥시메틸렌 (POM), 및 열가소성 가공될 수 있는 듀로플라스틱 성형 재료로 이루어진 군으로부터 선택되는, 구성 부품.
- [0214] 10. 항목 1 내지 항목 9 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체는, 하나 이상의 질화물 및/또는 산질화물을 포함하는 무기 결합제 상에 의해 서로 연결되는 소판-형상의 육방정 질화붕소 일차 입자를 포함하는, 구성 부품.
- [0215] 11. 항목 10에 있어서, 질화붕소 응집체의 무기 결합제 상은 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si₃N₄), 또는/및 질화붕소 (BN), 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄, 및/또는 질화규소, 더욱 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄을 포함하는, 구성 부품.
- [0216] 12. 항목 10 또는 항목 11에 있어서, 질화붕소 응집체의 무기 결합제 상은 질화알루미늄을 포함하는, 구성 부품.
- [0217] 13. 항목 10 내지 항목 12 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체는 각각의 경우에 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로 1 중량% 이상, 바람직하게는 5 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 10 중량% 이상, 더욱 바람직하게는 20 중량% 이상, 및 특히 바람직하게는 30 중량% 이상의 결합제 상 비율을 갖는, 구성 부품.
- [0218] 14. 항목 10 내지 항목 13 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체의 평균 응집체 직경 (d_{50})은 1000 μm 이하, 바람직하게는 500 μm 이하, 더욱 바람직하게는 400 μm 이하, 더욱 바람직하게는 300 μm 이하, 및 특히 바람직하게는 200 μm 이하인, 구성 부품.
- [0219] 15. 항목 10 내지 항목 14 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체의 종횡비는 1.0 내지 1.8, 바람직하게는 1.0 내지 1.5인, 구성 부품.
- [0220] 16. 항목 1 내지 항목 15 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체는, 플레이크형(flake-like) 질화붕소 응집체를 형성하도록 서로 응집되는 소판-형상의 육방정 일차 질화붕소 입자를 포함하는, 구성 부품.
- [0221] 17. 항목 16에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체의 텍스처 지수는 2.0 초과, 및 바람직하게는 2.5 이상, 또는 더욱 바람직하게는 3.0 이상, 또는 특히 바람직하게는 3.5 이상인, 구성 부품.
- [0222] 18. 항목 16 또는 항목 17에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체의 평균 응집체 직경 (d_{50})은 1000 μm 이하, 바람

직하계는 500 μm 이하, 더욱 바람직하게는 400 μm 이하, 더욱 바람직하게는 300 μm 이하, 및 특히 바람직하게는 200 μm 이하인, 구성 부품.

[0223] 19. 항목 16 내지 항목 18 중 어느 한 항목에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체의 두께는 500 μm 이하, 바람직하게는 200 μm 이하, 더욱 바람직하게는 100 μm 이하, 더욱 바람직하게는 70 μm 이하, 더욱 바람직하게는 50 μm 이하, 및 특히 바람직하게는 35 μm 이하인, 구성 부품.

[0224] 20. 항목 16 내지 항목 19 중 어느 한 항목에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체의 중량비는 1 초과, 및 바람직하게는 2.0 이상, 더욱 바람직하게는 3.0 이상, 더욱 바람직하게는 5 이상, 및 특히 바람직하게는 10 이상인, 구성 부품.

[0225] 21. 항목 16 내지 항목 20 중 어느 한 항목에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체는 무기 결합제 상을 포함하는, 구성 부품.

[0226] 22. 항목 21에 있어서, 비늘형 질화붕소 응집체는 각각의 경우에 비늘형 질화붕소 응집체의 총량을 기준으로 1% 이상, 바람직하게는 5% 이상, 더욱 바람직하게는 10% 이상, 더욱 바람직하게는 20% 이상, 및 특히 바람직하게는 30% 이상의 결합제 상 비율을 갖는, 구성 부품.

[0227] 23. 항목 21 또는 항목 22에 있어서, 결합제 상은 질화알루미늄 (AlN), 산질화알루미늄, 질화티타늄 (TiN), 질화규소 (Si_3N_4), 또는/및 질화붕소 (BN), 바람직하게는 질화알루미늄, 산질화알루미늄, 질화티타늄, 및/또는 질화규소, 더욱 바람직하게는 질화알루미늄 및/또는 산질화알루미늄을 포함하는, 구성 부품.

[0228] 24. 항목 23에 있어서, 결합제 상은 질화알루미늄 (AlN)을 함유하는, 구성부품.

[0229] 25. 항목 1 내지 항목 24 중 어느 한 항목에 있어서, 열전도율을 증가시키는, 질화붕소와 상이한 하나 이상의 충전제를 포함하는, 구성 부품.

[0230] 26. 항목 25에 있어서, 질화붕소와 상이한 충전제는, 바람직하게는 알루미늄, 규소, 티타늄, 구리, 철, 및 청동 분말, 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는 금속 분말인, 구성 부품.

[0231] 27. 항목 25에 있어서, 질화붕소와 상이한 충전제는, 흑연, 팽창된 흑연, 또는 카본 블랙 - 팽창된 흑연이 특히 바람직함 - 의 형태의 탄소인, 구성 부품.

[0232] 28. 항목 25에 있어서, 질화붕소와 상이한 충전제는, 바람직하게는 산화알루미늄, 산화마그네슘, 질화알루미늄, 이산화규소, 탄화규소, 질화규소, 및 이들의 혼합물 - 산화알루미늄, 산화마그네슘, 및/또는 질화알루미늄이 특히 바람직함 - 을 포함하는 군으로부터 선택되는 산화물, 질화물, 또는 탄화물인, 구성 부품.

[0233] 29. 항목 25에 있어서, 질화붕소와 상이한 충전제는 광물 충전제이며, 바람직하게는 알루미늄노실리케이트, 알루미늄 실리케이트, 마그네슘 실리케이트 ($2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$), 마그네슘 알루미늄네이트 ($\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$), 브루사이트 (수산화마그네슘, $\text{Mg}(\text{OH})_2$), 석영, 크리스토팔라이트, 및 이들의 혼합물을 포함하는 군으로부터 선택되는, 구성 부품.

[0234] 30. 항목 25 내지 항목 29 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체 및 질화붕소와 상이한 열전도성 충전제의 총 비율은 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 20 부피% 이상, 바람직하게는 30 부피% 이상인, 구성 부품.

[0235] 31. 항목 25 내지 항목 30 중 어느 한 항목에 있어서, 질화붕소 응집체 및 질화붕소와 상이한 열전도성 충전제의 총 비율은 각각의 경우에 중합체/질화붕소 배합물의 총 부피를 기준으로 70 부피% 이하, 바람직하게는 60 부피% 이하, 및 특히 바람직하게는 50 부피% 이하인, 구성 부품.

[0236] 32. 항목 1 내지 항목 31 중 어느 한 항목에 있어서, 구성 부품의 벽 두께는 구성 부품의 적어도 하나의 부분에서 2 mm 이하인, 구성 부품.

[0237] 33. 항목 1 내지 항목 32 중 어느 한 항목에 따른 구성 부품을 제조하기 위한 중합체/질화붕소 배합물로서, 중합체/질화붕소 배합물은 열가소성 가공가능한 중합체 재료 및 열전도성 충전제를 포함하고, 충전제는 질화붕소 응집체를 포함하는, 중합체/질화붕소 배합물.

[0238] 34. 냉각될 구성 부품 또는 조립체로부터의, 바람직하게는 전자 구성 부품 또는 조립체로부터의 방열을 위한, 항목 1 내지 항목 32 중 어느 한 항목에 따른 구성 부품의 용도.

[0239] 실시예 및 참고예

- [0240] 중합체를 질화붕소 응집체 또는 충전제 혼합물과 배합하기 위해서, ZSE 18 MAXX 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠(Leistritz))를 사용한다. 2가지의 상이한 스크루 구성을 사용하는데, 그 중 하나는 2개의 혼합 요소 및 6개의 혼련 블록을 갖는 비교적 거친 "표준" 스크루 구성 (스크루 구성 1)이고, 다른 하나는 3개의 혼합 요소를 가지며 혼련 블록을 갖지 않는 더 온화한 "소프트" 스크루 구성 (스크루 구성 2)이다. 스크루 속도는 300 RPM 및 900 RPM으로 설정한다. 폴리아미드 PA 6 (슐라미드(Schulamid)(등록상표) 6 NV 12)을 중합체로서 사용한다. 배합 동안, 중합체 용융물을 265℃로 가열한다. 처리량을 모든 시험에서 6 kg/h로 설정한다. 중합체를, 주 공급기를 통해 공급한다. 충전제 (질화붕소 응집체) 또는 충전제 혼합물 (질화붕소 응집체와 제2 충전제)을, 측면 공급기를 통해 공급한다.
- [0241] 충전제-함유 중합체 용융물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 배출하고, 스트랜드의 형태로 생각하고, 슈레더 (shredder)에서 가공하여 과립을 형성한다. 사출 성형을 통해, 과립으로부터 80 × 80 mm의 밀면을 갖는 2 mm의 얇은 플레이트를 제조한다.
- [0242] 실시예 1:
- [0243] 실시예 1a): 질화붕소 하이브리드 플레이크 (이방성 비늘형 질화물-결합된 질화붕소 응집체)의 제조
- [0244] 4000 g의 알루미늄 페이스트 스타파 알루포르(STAPA ALUPOR) SK I-NE/70 (독일 하르텐슈타인 소재의 에카르트(Eckart)) 및 7000 g의 질화붕소 분말 보로니드(BORONID)(등록상표) S1-SF (독일 소재의 이에스케이 세라믹스 게엠베하 운트 코. 카게(ESK Ceramics GmbH & Co. KG); 레이저 회절 (마스터사이저 2000, 몰번, 습식 측정)에 의해 측정된 평균 입자 크기 $d_{50} = 3 \mu\text{m}$)를 롤러 블록 상에서 PE 드럼 내에서 그라인딩 볼을 사용하여 20시간 동안 균질화시킨다. 분말 혼합물을 롤러 콤팩터(roller compactor) RC 250*250 (독일 램사이트 소재의 파우텍(Powtec))에 중량 측정식 투입(gravimetric dosing)을 통해 8 kg/h로 투입한다. 비어 있는 채로 작동될 때 매끄러운 스테인리스 강 롤러들이 접촉하게 되는 방식으로 롤러 콤팩터를 변경한다. 롤러들에 75 kN의 접촉력 - 이는 롤러 간극 길이 1 cm당 3 kN에 상응함 - 을 가하고, 롤러 속도를 20 RPM으로 설정한다. 이는 두께가 30 μm 이고 직경이 최대 수 센티미터인 질화붕소 하이브리드 플레이크를 생성한다. 롤러에 들러붙은 그린 (즉, 압밀되었지만 아직 열처리되지 않은) 질화붕소 하이브리드 플레이크를 스크레이퍼(scraper)로 떼어낸다. 압밀 후에, 체질하여 200 μm 미만의 미세분을 제거하고, PE 드럼 내에서의 4000 g의 알루미늄 페이스트 및 7000 g의 질화붕소 분말 S1의 다음의 원료 균질화 동안 공급한다. 총 55 kg의 질화붕소 하이브리드 플레이크가 제조될 때까지 이 공정을 반복한다. 공기의 배제 하에 300℃에서 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 질화붕소 하이브리드 플레이크를 결합체로부터 분리하고, 질화붕소 하이브리드 플레이크 내의 알루미늄 부분을 800℃에서 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 5시간의 홀딩 시간 동안 대부분 AlN으로 전환한다. 후속하여 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 2시간 동안 1950℃에서 고온 어닐링을 수행한다.
- [0245] 4000 g의 알루미늄 페이스트 스타파 알루포르 SK I-NE/70 (독일 하르텐슈타인 소재의 에카르트) 및 7000 g의 질화붕소 분말 보로니드(등록상표) S1-SF (독일 소재의 이에스케이 세라믹스 게엠베하 운트 코. 카게; 레이저 회절 (마스터사이저 2000, 몰번, 습식 측정)에 의해 측정된 평균 입자 크기 $d_{50} = 3 \mu\text{m}$)를 롤러 블록 상에서 PE 드럼 내에서 그라인딩 볼을 사용하여 20시간 동안 균질화시킨다. 분말 혼합물을 롤러 콤팩터 RC 250*250 (독일 램사이트 소재의 파우텍)에 중량 측정식 투입을 통해 8 kg/h로 투입한다. 비어 있는 채로 작동될 때 매끄러운 스테인리스 강 롤러들이 접촉하게 하는 방식으로 롤러 콤팩터를 변경한다. 롤러들에 75 kN의 접촉력 - 이는 롤러 간극 길이 1 cm당 3 kN에 상응함 - 을 가하고, 롤러 속도를 20 RPM으로 설정한다. 이는 두께가 30 μm 이고 직경이 최대 수 센티미터인 질화붕소 하이브리드 플레이크를 생성한다. 롤러에 들러붙은 그린 (즉, 압밀되었지만 아직 열처리되지 않은) 질화붕소 하이브리드 플레이크를 스크레이퍼로 떼어낸다. 압밀 후에, 체질하여 200 μm 미만의 미세분을 제거하고, PE 드럼 내에서의 4000 g의 알루미늄 페이스트 및 7000 g의 질화붕소 분말 S1의 다음의 원료 균질화 동안 공급한다. 총 55 kg의 질화붕소 하이브리드 플레이크가 제조될 때까지 이 공정을 반복한다. 공기의 배제 하에 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 300℃에서 질화붕소 하이브리드 플레이크를 결합체로부터 분리하고, 질화붕소 하이브리드 플레이크 내의 알루미늄 부분을 800℃에서 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 5시간의 홀딩 시간 동안 대부분 AlN으로 전환한다. 후속하여 80% 질소 및 20% 아르곤의 분위기에서 2시간 동안 2050℃에서 고온 어닐링을 수행한다.
- [0246] 샘플로부터의 산소를 탄소와 반응시키고 발생하는 CO₂의 함량을 IR 분광기 (TCH 600, 독일 뮌헨글라트바흐 소재의 레코(LECO))에 의해 결정하는, 캐리어 가스 열간 추출에 의해 간접적으로 산소 함량을 결정하였다. 산소 함량은 0.15%이다.

- [0247] X-선 라디오그래피로, 오직 질화붕소 상 및 질화알루미늄 상만을 검출하는 것이 가능하였다.
- [0248] 질화붕소 하이브리드 플레이크를 진동 스크린에서 고무 볼을 사용하여 부순다. 5 mm, 2 mm, 1 mm, 및 500 μ m의 순서로 스크린을 사용한다.
- [0249] 500 μ m 미만의 스크린 분획에서 얻은 질화붕소 하이브리드 플레이크는 레이저 회절 (마스터사이저 2000, 물번, 습식 측정)에 의해 측정된 평균 입자 크기 (d_{50})가 192 μ m이다. 질화붕소 하이브리드 플레이크의 두께는 30 μ m이다. 두께는 디지털 정밀 게이지를 사용하여 결정한다.
- [0250] 질화붕소 하이브리드 플레이크의 충전에 대해 측정된 텍스처 지수는 20.6이다.
- [0251] 제조된 질화붕소 하이브리드 플레이크로부터, 200 μ m 미만의 분획을 부수고, 체질하여 100 μ m 미만의 미세분을 분리한다. 그렇게 얻은 질화붕소 하이브리드 플레이크의 100 내지 200 μ m의 스크린 분획에 대해 초음파법을 사용하여 응집체 안정성을 결정한다. 질화붕소 하이브리드 플레이크에 대해 결정된 응집체 안정성은 75%이다.
- [0252] 500 μ m 미만의 스크린 분획에서, 제조된 질화붕소 하이브리드 플레이크의 SEM 개관 이미지 (도 3a)는 응집체의 평탄한 표면을 명확하게 나타낸다. 이러한 표면은 (2개의 회전하는, 대향 이동 롤러들 사이에서 압축하는) 형상화법에 의해서 후속 분쇄 없이 직접 제조된 형상화된 표면이다. 도 4b는 30 μ m의 두께를 갖는 응집체의 파쇄된 표면, 상기 응집체의 평탄한 형상화된 표면 및 추가적인 응집체의 평탄한 형상화된 표면을 나타낸다.
- [0253] 실시예 1b): PA 6과 10 부피%의 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0254] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE 18 MAXX)에서, 폴리아미드 PA 6 (슐라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 술만(A. Schulman))을 중합체로서 중량 측정식 주 공급기를 통해 첨가하고, 실시예 1a)로부터의 질화붕소 하이브리드 플레이크를 중량 측정식 측면 공급기를 통해 첨가한다. 거친 스크루 구성 1을 사용한다. 스크루 속도를 300 RPM으로 설정하고 6 kg/h의 처리량으로 작동하는데, PA 6을 주 공급으로 4.8 kg/h로 투입하고 500 μ m 미만의 체 분획으로부터의 질화붕소 하이브리드 플레이크를 측면 공급으로 1.2 kg/h로 투입한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 수조 내의 냉각 섹션에 통과시키고, 슈레딩하여 과립을 형성한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 10 부피%이다.
- [0255] 실시예 1c): 2 mm의 얇은 플레이트의 사출 성형 및 열전도율 측정
- [0256] 실시예 1b)로부터의 배합물 과립을 사출 성형기 (엔겔 e-모션(Engel e-motion))에서 치수 $80 \times 80 \times 2$ mm³인 2 mm의 얇은 플레이트로 사출 성형한다.
- [0257] 두께가 2 mm인 디스크 형상의 사출 성형된 샘플에서 열전도율을 측정하고, 평면 통과 열전도율의 측정을 위한 샘플을, 두께가 2 mm인 사출 성형된 플레이트 (치수 $2 \times 80 \times 80$ mm³)의 중심으로부터 $2 \times 10 \times 10$ mm³의 치수로 제조한다. 열전도율을 측정하기 위한 샘플의 두께는 사출 성형에 의한 플레이트 두께에 상응한다. 실시예 1 b)로부터의 배합물 과립을 사출 성형기 (엔겔 e-모션)에서 치수 $80 \times 80 \times 2$ mm³인 2 mm의 얇은 플레이트로 사출 성형한다.
- [0258] 두께가 2 mm인 디스크 형상의 사출 성형된 샘플에서 열전도율을 측정하고, 평면 통과 열전도율을 측정하기 위한 샘플을, 두께가 2 mm인 사출 성형된 플레이트 (치수 $2 \times 80 \times 80$ mm³)의 중심으로부터 $2 \times 10 \times 10$ mm³의 치수로 제조한다. 평면 통과 열전도율 측정을 위한 샘플의 두께는 사출 성형에 의한 플레이트 두께에 상응한다. 평면 내 열전도율을 측정하기 위하여, 사출 성형된 2 mm의 얇은 플레이트의 플레이트 스택을, 순간 접촉제를 사용하여 함께 접촉시키고, 평면 통과 방향에 평행하고 사출 성형 샘플의 유동 방향에 수직인 방식으로 제조된 플레이트 스택으로부터 치수 $2 \times 10 \times 10$ mm³인 2 mm의 얇은 플레이트를 제조한다. 이러한 샘플을 사용하여 평면 내 열전도율을 결정한다.
- [0259] 기재된 바와 같이 결정된 평면 내 열전도율을 취하고, 이것을 기재된 바와 같이 측정된 평면 통과 열전도율로 나누어서 이방성 비를 계산한다.
- [0260] 열전도율을 측정하기 위하여, 레이저-플래시법을 사용하는데, DIN EN ISO 22007-4에 따라 나노플래시(Nanoflash) LFA 447 (독일 젤브 소재의 네츠쉬(Netzsch))를 사용하여 수행한다. 측정은 22°C에서 수행한다.
- [0261] 열 확산율 a , 비열 용량 c_p 및 밀도 D 에 대한 값을 측정하여 열전도율 (TC)을 결정하는데, 하기 식에 따라 이들 값으로부터 계산한다

- [0262] $TC = a * c_p * D$.
- [0263] a 및 c_p 는, 치수 $10 \times 10 \times 2$ mm을 갖는, 상기에 기재된 바와 같이 제조된 샘플에 대해 나노플래시 LFA 447 (독일 젤브 소재의 네즈쉬)을 사용하여 측정한다. 정밀하게 형상화된 샘플을 칭량하고 그의 기하학적 치수를 결정함으로써 밀도를 계산한다. 표준 피로세라믹(Pyroceram) 9606을 측정에 사용한다.
- [0264] 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0265] 충전되지 않은 중합체 PA 6 (솔라미드(등록상표) 6 NV 12)의 경우, 치수 $80 \times 80 \times 2$ mm을 갖는 사출 성형된 얇은 플레이트에서 결정된 열전도율은 $0.26 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 이다.
- [0266] 실시예 2:
- [0267] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0268] 실시예 1에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이트의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트 대신에 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트를 PA 6에 배합한다.
- [0269] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0270] 실시예 3:
- [0271] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0272] 실시예 1에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이트의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트 대신에 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트를 PA 6에 배합한다.
- [0273] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0274] 실시예 4:
- [0275] PA 6과 40 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0276] 실시예 1에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이트의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트 대신에 40 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트를 PA 6에 배합한다.
- [0277] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0278] 실시예 5:
- [0279] PA 6과 50 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0280] 실시예 1에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이트의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트 대신에 50 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트를 PA 6에 배합한다.
- [0281] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0282] 실시예 6:
- [0283] PA 6, 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 10 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0284] 5.82 kg의 평균 입자 크기 (d_{50})가 $6.3 \mu\text{m}$ 인 알루미늄실리케이트 트레필(Trefil) 1360-400 (독일 프레헨 소재의 콰즈베르케(Quarzwерke)) 및 4.18 kg의 실시예 1로부터의 하이브리드 플레이트를 롤러 블록 상에서 PE 드럼 내에서 5분 동안 균질화시켜서 충전제 혼합물을 제조한다. 알루미늄실리케이트는 밀도가 3.6 g/cm^3 이고, 열전도율이 $14 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 이다. 라디오그래프에 따르면, 알루미늄실리케이트의 주된 상은 키아나이트 (Al_2SiO_5)이다. 수학적으로 계산할 때, 동일한 부피 비율로 충전제들이 충전제 혼합물 중에 존재하도록 충전제 혼합물을 조정한다.
- [0285] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE18 max)에서, PA 6 (솔라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 슬만)을 중량 측정식 주 공급으로 첨가하고, 질화붕소 하이브리드 플레이트 및 알루미늄

실리케이트로부터의 충전제 혼합물을 중량 측정식 측면 공급을 통해 첨가한다. 이축 압출기에 300 RPM의 스크루 속도 및 6 kg/h의 처리 속도를 설정하고; 3.6 kg/h로 PA 6을 주 공급으로 투입하고 2.4 kg/h로 충전제 혼합물을 측면 공급으로 투입한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 20 부피%가 되도록 배합을 조정한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 이어서 수조 내의 냉각 섹션에 통과시키고, 이어서 슈레딩하여 과립을 형성한다.

[0286] 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 10 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 10 부피%이다.

[0287] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0288] 실시예 7:

[0289] PA 6, 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 20 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0290] 수학적으로 계산할 때, 충전제 혼합물 중의 알루미늄실리케이트와 질화붕소 하이브리드 플레이크가 2배의 부피 비율로 존재하도록, 알루미늄실리케이트 및 질화붕소 하이브리드 플레이크의 양의 비율을 선택하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 30 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 10 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 20 부피%이다.

[0291] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0292] 실시예 8:

[0293] PA 6, 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 30 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0294] 수학적으로 계산할 때, 충전제 혼합물 중의 알루미늄실리케이트와 질화붕소 하이브리드 플레이크가 3배의 부피 비율로 존재하도록, 알루미늄실리케이트 및 질화붕소 하이브리드 플레이크의 양의 비율을 선택하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 40 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 10 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 30 부피%이다.

[0295] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0296] 실시예 9:

[0297] PA 6, 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 40 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0298] 수학적으로 계산할 때, 충전제 혼합물 중의 알루미늄실리케이트와 질화붕소 하이브리드 플레이크가 4배의 부피 비율로 존재하도록, 알루미늄실리케이트 및 질화붕소 하이브리드 플레이크의 양의 비율을 선택하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 50 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 10 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 30 부피%이다.

[0299] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0300] 실시예 10:

[0301] PA 6, 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 10 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0302] 수학적으로 계산할 때, 충전제 혼합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크와 알루미늄실리케이트가 2배의 부피 비율로 존재하도록, 알루미늄실리케이트 및 질화붕소 하이브리드 플레이크의 양의 비율을 선택하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 30 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 20 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 10 부피%이다.

- [0303] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0304] 실시예 11:
- [0305] PA 6, 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 20 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0306] 실시예 6에 따라 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 40 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이트의 비율은 20 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 20 부피%이다.
- [0307] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0308] 실시예 12:
- [0309] PA 6, 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 30 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0310] 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이트가 충전제 혼합물 중에 40 부피%로 존재하고 알루미늄실리케이트가 충전제 혼합물 중에 60 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 50 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이트의 비율은 20 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 30 부피%이다.
- [0311] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0312] 실시예 13:
- [0313] PA 6, 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 10 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0314] 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이트가 충전제 혼합물 중에 75 부피%로 존재하고 알루미늄실리케이트가 충전제 혼합물 중에 25 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 40 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이트의 비율은 30 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 10 부피%이다.
- [0315] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0316] 실시예 14:
- [0317] PA 6, 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 20 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0318] 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이트가 충전제 혼합물 중에 60 부피%로 존재하고 알루미늄실리케이트가 충전제 혼합물 중에 40 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 50 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이트의 비율은 30 부피%이고, 배합물 중의 알루미늄실리케이트의 비율은 20 부피%이다.
- [0319] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0320] 실시예 15:
- [0321] PA 6, 40 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이트, 및 10 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0322] 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이트가 충전제 혼합물 중에 80 부피%로 존재하고 알루미늄실리케이트가 충전제 혼합물 중에 20 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 50 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이트의 비율은 40 부피%이고, 배합물 중의 알

루미노실리케이트의 비율은 10 부피%이다.

[0323] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0324] 실시예 16:

[0325] PA 6, 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 20 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조

[0326] 이 경우에는 알루미늄실리케이트 대신에 수산화마그네슘 (브루사이트, 아피마그(APYMAG) 40, 독일 슈만도르프 소재의 나발테크(Nabaltech))을 사용하고, 따라서, 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이크가 충전제 혼합물 중에 50 부피%로 존재하고 수산화마그네슘이 충전제 혼합물 중에 50 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 충전제 혼합물을 제조한다. 수산화마그네슘은 밀도가 2.4 g/cm³이다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 40 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 40 부피%이고, 배합물 중의 수산화마그네슘의 비율은 10 부피%이다.

[0327] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0328] 실시예 17:

[0329] PA 6, 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크, 및 10 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조

[0330] 수학적으로 계산할 때, 질화붕소 하이브리드 플레이크가 충전제 혼합물 중에 75 부피%로 존재하고 수산화마그네슘이 충전제 혼합물 중에 25 부피%로 존재하는 점을 제외하고는, 실시예 16에 기재된 바와 같이 질화붕소 하이브리드 플레이크 및 수산화마그네슘을 포함하는 충전제 혼합물을 제조한다. 배합물 중의 충전제 혼합물의 부피 비율이 40 부피%인 점을 제외하고는, 실시예 6에 기재된 바와 같이 배합을 수행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 플레이크의 비율은 30 부피%이고, 배합물 중의 수산화마그네슘의 비율은 10 부피%이다.

[0331] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.

[0332] 실시예 18:

[0333] 질화붕소 하이브리드 응집체 (등방성 질화물-결합된 질화붕소 응집체)의 제조 및 PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조

[0334] 14 kg의 육방정 질화붕소 분말 (보로니드(등록상표) S1-SF, 독일 소재의 이에스케이 세라믹스 게엠베하 운트 코. 카게, 레이저 회절 (마스터사izer 2000, 몰번, 습식 측정)에 의해 측정된 평균 입자 크기 (d₅₀) = 3 μm)을 알루미늄 페이스트 (독일 벨덴 소재의 에카르트 게엠베하 운트 코. 카게(Eckart GmbH & Co. KG)로부터의 그레이드 스타파 알루미늄 SK I-NE/75)로부터의 8 kg의 알루미늄 분말과 혼합하고 롤러 블록 상에서 PE 드럼 내에서 그라인딩 볼을 사용하여 20시간 동안 균질화시킨다.

[0335] 분말 혼합물을 중량 측정식 측면 공급을 통해 40 kg/h로 RC 250*250 롤러 콤팩터 (독일 램사이트 소재의 파우텍) 내로 분배한다. 비어 있는 채로 작동될 때 주름진 스테인리스 강 롤러들이 접촉하게 되도록 롤러 콤팩터를 변경한다. 롤러들에 306 kN의 접촉력 - 이는 롤러 간극 길이 1 cm당 12.2 kN에 상응함 - 을 가하고, 롤러 속도를 25 RPM으로 설정한다. 롤러에 들러붙은 그린 스캐프(scab)을 스크레이퍼를 사용하여 떼어낸다. 스캐프는 두께가 0.4 내지 1.6 mm이다. 스캐프를 1 mm 메시 폭을 갖는 일체형(integrated) 체 그레이터에서 파쇄한다. 생성된 과립을 동일한 공정 조건 하에서 다시 공급하며, 그 동안 일체형 체를 우회하여, 베이스 표면이 대략 3 cm² 이고 두께가 0.4 내지 1.6 mm인 스캐프를 얻는다.

[0336] 질소 분위기 중에서 300℃에서 결합제를 제거하고 질소-아르곤 혼합물 (80% 질소, 20% 아르곤) 중에서 800℃에서 5시간 동안 초기 질화시킨 후에, 결합제 상의 고온 질화 및 어닐링을 유도하는 질소-아르곤 분위기 (80% 질소, 20% 아르곤) 중에서 1950℃에서 2시간 동안 수행한다. 이 공정에서, 가열은 17.5℃/min으로 1600℃까지 수행한다; 1600℃에서 1시간의 홀딩 시간 후에, 1950℃의 최종 온도에 도달할 때까지 17.5℃/min으로 추가의 가열을 수행한다. 얻어진 질화물-결합된 질화붕소 스캐프를 체로 200 μm 미만의 크기까지 분쇄한다. 생성된 미세분의 일부가 생성물 중에 남아 있다.

- [0337] 이러한 방식으로 제조된 질화붕소 하이브리드 응집체의 평균 응집체 크기 (d_{50})는 56 μm 이다.
- [0338] 실시예 1에 기재된 바와 같이 알루미늄 함량, 비-알루미늄(aluminum-free) 함량, 탄소 함량, 산소 함량, 및 비표면적을 결정한다. 어닐링 후에, 질화붕소 하이브리드 플레이크 중의 총 알루미늄 함량은 24.2 중량%이다. 그 결과, 알루미늄 비율로부터, 질화붕소 응집체 중의 질화알루미늄 비율은 36.5 중량%가 된다. 비-알루미늄 함량은 0.58 중량%이고, 탄소 함량은 0.12 중량%이고, 산소 함량은 0.15 중량%이다. 비표면적 (BET)은 6.5 m^2/g 이다.
- [0339] 얻어진 질화붕소 하이브리드 응집체에서, 주된 상으로서의 육방정 질화붕소에 더하여, 질화알루미늄을 라디오그래피에 의해 확인할 수 있다. 결정된 텍스처 지수는 1.7이다.
- [0340] 200 μm 미만의 제조된 질화붕소 하이브리드 응집체로부터, 체질하여 100 μm 미만의 미세분 부분을 분리해 제거한다. 그렇게 얻은 질화붕소 응집체의 100 내지 200 μm 체 분획에 대해 초음파법을 사용하여 응집체 안정성을 결정한다.
- [0341] 붕소 응집체에 대해 결정된 응집체 안정성은 85%이다.
- [0342] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE18 max)에서, PA 6 (슐라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 슐만)을 중량 측정식 주 공급을 통해 첨가하고, 앞서 제조된 바와 같은 질화붕소 하이브리드 응집체를 중량 측정식 측면 공급을 통해 첨가한다. 도 2에 따른 스크루 구성 2를 사용하고, 300 RPM의 스크루 속도를 설정하고, 6 kg/h의 처리 속도로 작동하며; 3.8 kg/h로 PA 6을 주 공급으로 첨가하고 2.2 kg/h로 하이브리드 응집체를 측면 공급으로 첨가한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 이어서 수조 내의 냉각 섹션에 통과시키고, 슈레딩하여 과립을 형성한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 응집체의 비율은 20 부피%이다.
- [0343] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0344] 실시예 19:
- [0345] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0346] 실시예 18에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체 대신에 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체를 PA 6에 배합한다.
- [0347] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0348] 실시예 20:
- [0349] PA 6과 40 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0350] 실시예 18에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체 대신에 40 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체를 PA 6에 배합한다.
- [0351] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0352] 실시예 21:
- [0353] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0354] 실시예 18에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 900 RPM의 속도에서 도 2에 따른 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행한다. 배합물 중의 질화붕소 하이브리드 응집체의 비율은 20 부피%이다.
- [0355] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0356] 실시예 22:

- [0357] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0358] 실시예 18에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하되, 그 동안 900 RPM의 속도에서 도 2에 따른 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행하며, 그 동안 이 경우에는 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체 대신에 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체를 PA 6에 배합한다.
- [0359] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0360] 실시예 23:
- [0361] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0362] 실시예 18에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 1을 사용하여 배합을 행한다.
- [0363] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0364] 실시예 24:
- [0365] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0366] 실시예 19에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 1을 사용하여 배합을 행한다.
- [0367] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0368] 실시예 25:
- [0369] PA 6과 40 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0370] 실시예 20에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 1을 사용하여 배합을 행한다.
- [0371] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0372] 실시예 26:
- [0373] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0374] 실시예 21에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 1을 사용하여 배합을 행한다.
- [0375] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0376] 실시예 27:
- [0377] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0378] 실시예 22에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 1을 사용하여 배합을 행한다.
- [0379] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0380] 실시예 28:
- [0381] PA 6과 40 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체로 이루어진 배합물의 제조
- [0382] 실시예 25에 따라 질화붕소 하이브리드 응집체의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 900 RPM의 스크루 속도에서 배합을 행한다.

- [0383] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0384] 실시예 29:
- [0385] 질화붕소 하이브리드 플레이크 (등방성 비늘형 질화물-결합된 질화붕소 응집체)의 제조 및 PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0386] 실시예 1에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조를 수행하는 동안, 5.3 kg의 알루미늄 페이스트 스타와 알루미늄 SK I-NE/70 (독일 하르텐슈타인 소재의 에카르트) 및 6 kg의 질화붕소 분말 보로니드(등록상표) S1-SF (독일 소재의 이에스케이 세라믹스 게엠베하 운트 코. 카게, 레이저 회절 (마스터사이저 2000, 몰번, 습식 측정)을 사용하여 측정된 평균 입자 크기 (d_{50}) = 3 μm)를 사용한다. 이는 두께가 10 μm 이고 직경이 최대 수 센티미터인 질화붕소 하이브리드 플레이크를 생성한다. 실시예 1에 기재된 바와 같이 수행되는 어닐링 후에, 알칼리 용융(alkaline melt fusion) 및 ICP-OES (아르코스(Arcos), 독일 클레베 소재의 스펙트로(Spectro))를 사용하여 측정된 질화붕소 하이브리드 플레이크 중의 총 알루미늄 비율은 33.3 중량%이다. 그 결과, 알루미늄 비율로부터, 질화붕소 하이브리드 플레이크 중의 질화알루미늄 비율은 50 중량%가 된다.
- [0387] X-선 라디오그래피로, 오직 질화붕소 상 및 질화알루미늄 상만을 검출하는 것이 가능하였다. 500 μm 미만의 체 분획에서의 질화붕소 하이브리드 플레이크는 레이저 회절 (마스터사이저 2000, 몰번, 습식 측정)에 의해 측정된 평균 응집체 직경 (d_{50})이 78 μm 이다. 질화붕소 하이브리드 플레이크의 두께는 10 μm 이다. 두께는 고정밀 디지털 게이지를 사용하여 결정한다.
- [0388] 500 μm 미만의 체 분획에서, 제조된 질화붕소 하이브리드 플레이크의 SEM 개관 이미지 (도 5)는 응집체의 평탄한 표면을 나타낸다. 이러한 표면은 (2개의 대향 회전 롤러들 사이에서 압밀하는) 형상화법에 의해서 직접 제조된 형상화된 표면이며, 후속 파쇄의 결과가 아니었다.
- [0389] 제조된 질화붕소 하이브리드 플레이크로부터, 200 μm 미만의 분획을 파쇄하고, 체질하여 100 μm 미만의 미세분을 분리해 제거한다. 그러한 방식으로 얻은 질화붕소 하이브리드 플레이크의 100 내지 200 μm 체 분획에 대해 초음파법을 사용하여 응집체 안정성을 결정한다. 하이브리드 플레이크에 대해 결정된 응집체 안정성은 80%이다.
- [0390] 스크루 구성 1을 사용하여 실시예 1에 따라 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 10 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크 대신에 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크를 PA 6에 배합한다. 300 RPM의 스크루 속도를 설정하고 6 kg/h의 처리 속도로 작동하고; 3.8 kg/h로 PA 6을 주 공급으로 첨가하고 2.2 kg/h로 500 μm 미만의 체 분획으로부터의 질화붕소 하이브리드 플레이크를 측면 공급으로 첨가한다.
- [0391] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0392] 실시예 30:
- [0393] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0394] 실시예 29에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체 대신에 30 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체를 PA 6에 배합한다.
- [0395] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0396] 실시예 31:
- [0397] PA 6과 40 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0398] 실시예 29에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 이 경우에는 20 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체 대신에 40 부피% 질화붕소 하이브리드 응집체를 PA 6에 배합한다.
- [0399] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0400] 실시예 32:

- [0401] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0402] 실시예 29에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 배합 시 300 RPM 대신에 900 RPM의 스크루 속도를 설정한다.
- [0403] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0404] 실시예 33:
- [0405] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0406] 실시예 30에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 배합 시 300 RPM 대신에 900 RPM의 스크루 속도를 설정한다.
- [0407] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0408] 실시예 34:
- [0409] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0410] 실시예 29에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행한다.
- [0411] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0412] 실시예 35:
- [0413] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0414] 실시예 30에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행한다.
- [0415] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0416] 실시예 36:
- [0417] PA 6과 20 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0418] 실시예 32에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행한다.
- [0419] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0420] 실시예 37:
- [0421] PA 6과 30 부피% 질화붕소 하이브리드 플레이크로 이루어진 배합물의 제조
- [0422] 실시예 33에 따라 질화붕소 하이브리드 플레이크의 제조 및 배합을 수행하는 동안, 스크루 구성 2를 사용하여 배합을 행한다.
- [0423] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 1에 열거되어 있다.
- [0424] 참고예 1:
- [0425] PA 6과 30 부피% TCP015-100으로 이루어진 배합물의 제조
- [0426] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE18 max)에서, 폴리아미드 PA 6 (슬라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 슬만)을 중합체로서 중량 측정식 주 공급으로 첨가하고, 질화붕소 응집체 TCP015-100 (독일 켐프텐 소재의 이에스케이 세라믹스)을 중량 측정식 측면 공급을 통해 첨가한다. 거친 스크

루 구성인, 구성 1을 사용한다. 900 RPM의 스크루 속도를 설정하고 6 kg/h의 처리량으로 작동하고; 3.3 kg/h로 PA 6을 주 공급으로 첨가하고, 2.7 kg/h로 일차 질화붕소 입자 크기가 15 μm 인 질화붕소 분말 TCP015-100을 측면 공급으로 첨가한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 이어서 수조 내의 냉각 섹션에 통과시키고, 이어서 슈레딩하여 과립을 형성한다. 배합물 중의 질화붕소의 비율은 30 부피%이다.

[0427] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0428] 질화붕소 응집체는 사출 성형된 플레이트 중에 일차 입자로서 분산되는데, 이는 사출 성형된 플레이트의 횡단면 및 파쇄 표면의 SEM 이미지에서 확인할 수 있다.

[0429] 참고예 2:

[0430] PA 6과 40 부피% TCP015-100으로 이루어진 배합물의 제조

[0431] 참고예 1에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 30 부피% TCP015-100 대신에 40 부피% 질화붕소 응집체 TCP015-100을 PA 6에 배합한다.

[0432] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0433] 질화붕소 응집체는 사출 성형된 플레이트 중에 일차 입자로서 분산되는데, 이는 사출 성형된 플레이트의 횡단면 및 파쇄 표면의 SEM 이미지에서 확인할 수 있다.

[0434] 참고예 3:

[0435] PA 6과 50 부피% TCP015-100으로 이루어진 배합물의 제조

[0436] 참고예 1에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 30 부피% TCP015-100 대신에 50 부피% 질화붕소 응집체 TCP015-100을 PA 6에 배합한다.

[0437] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0438] 질화붕소 응집체는 사출 성형된 플레이트 중에 일차 입자로서 분산되는데, 이는 사출 성형된 플레이트의 횡단면 및 파쇄 표면의 SEM 이미지에서 확인할 수 있다.

[0439] 참고예 4:

[0440] PA 6과 10 부피% 알루미늄노실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0441] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE18 max)에서, 폴리아미드 PA 6 (슐라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 술만)을 중합체로서 중량 측정식 주 공급기를 통해 첨가하고, 평균 입자 크기 (d_{50})가 6.3 μm 인 알루미늄노실리케이트 트레필 1360-400 (독일 프레헨 소재의 콰즈베르케)을 중량 측정식 측면 공급기를 통해 첨가한다. 거친 스크루 구성인, 구성 1을 사용한다. 300 RPM의 스크루 속도를 설정하고 6 kg/h의 처리량으로 작동하고; 4.4 kg/h로 PA 6을 주 공급 동안 첨가하고 1.6 kg/h로 알루미늄노실리케이트를 측면 공급 동안 첨가한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 이어서 수조 내의 냉각 라인에 통과시키고, 슈레딩하여 과립을 형성한다. 배합물 중의 알루미늄노실리케이트의 비율은 10 부피%이다.

[0442] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0443] 참고예 5:

[0444] PA 6과 20 부피% 알루미늄노실리케이트로 이루어진 배합물의 제조

[0445] 참고예 4에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 알루미늄노실리케이트 대신에 20 부피% 알루미늄노실리케이트를 PA 6에 배합한다.

[0446] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

- [0447] 참고예 6:
- [0448] PA 6과 30 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0449] 참고예 4에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 알루미늄실리케이트 대신에 30 부피% 알루미늄실리케이트를 PA 6에 배합한다.
- [0450] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.
- [0451] 참고예 7:
- [0452] PA 6과 40 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0453] 참고예 4에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 알루미늄실리케이트 대신에 40 부피% 알루미늄실리케이트를 PA 6에 배합한다.
- [0454] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.
- [0455] 참고예 8:
- [0456] PA 6과 50 부피% 알루미늄실리케이트로 이루어진 배합물의 제조
- [0457] 참고예 4에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 알루미늄실리케이트 대신에 50 부피% 알루미늄실리케이트를 PA 6에 배합한다.
- [0458] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.
- [0459] 참고예 9:
- [0460] PA 6과 10 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조
- [0461] 이축 압출기 (독일 누렘부르크 소재의 라이스트리츠 ZSE18 max)에서, 폴리아미드 PA 6 (솔라미드(등록상표) 6 NV 12, 독일 케르펜 소재의 에이. 슬만)을 중합체로서 중량 측정식 주 공급기를 통해 첨가하고, 평균 입자 크기 (d_{50})가 5 μm 인 수산화마그네슘 (아피마그 40, 독일 슈반도르프 소재의 나발테크)을 중량 측정식 측면 공급기를 통해 첨가한다. 거친 스크루 구성인, 구성 1을 사용한다. 300 RPM의 스크루 속도 및 6 kg/h의 처리 속도를 설정하고; 4.9 kg/h로 PA 6을 주 공급 동안 첨가하고 1.1 kg/h로 수산화마그네슘을 측면 공급 동안 첨가한다. 얻어진 배합물을 2개의 3 mm 노즐을 통해 채널링하고, 이어서 수조 내의 냉각 섹션에 통과시키고, 슈레딩하여 과립을 형성한다. 배합물 중의 수산화마그네슘이 비율은 10 부피%이다.
- [0462] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.
- [0463] 참고예 10:
- [0464] PA 6과 20 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조
- [0465] 참고예 9에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 수산화마그네슘 대신에 20 부피% 수산화마그네슘을 PA 6에 배합한다.
- [0466] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.
- [0467] 참고예 11:
- [0468] PA 6과 30 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조
- [0469] 참고예 9에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 수산화마그네슘 대신에 30 부피% 수산화마그네슘을 PA 6에 배합한다.
- [0470] 실시예 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과,

및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0471]

참고예 12:

[0472]

PA 6과 40 부피% 수산화마그네슘으로 이루어진 배합물의 제조

[0473]

참고예 9에 따라 배합을 수행하되, 이 경우에는 10 부피% 수산화마그네슘 대신에 40 부피% 수산화마그네슘을 PA 6에 배합한다.

[0474]

실시에 1에 기재된 바와 같이 사출 성형 및 열전도율 측정을 수행한다. 배합 파라미터, 열전도율 측정 결과, 및 이방성 비가 표 2에 열거되어 있다.

[0475]

[표 1]

실시에 번호	질화붕소 응집체 [부피%]	제 2 충전제 [부피%]	평면 내 열전도율 [W/m*K]	평면 통과 열전도율 [W/m*K]	이방성 비	스크루 구성	스크루 속도 [RPM]
1	10	0	0.89	0.48	1.8	1	300
2	20	0	1.86	0.75	2.5	1	300
3	30	0	2.90	1.22	2.4	1	300
4	40	0	4.55	1.90	2.4	1	300
5	50	0	6.01	2.60	2.3	1	300
6	10	10	1.25	0.65	1.9	1	300
7	10	20	1.39	0.84	1.7	1	300
8	10	30	1.83	1.26	1.5	1	300
9	10	40	3.19	1.51	2.1	1	300
10	20	10	2.41	1.10	2.2	1	300
11	20	20	3.24	1.53	2.1	1	300
12	20	30	3.61	1.97	1.8	1	300
13	30	10	3.78	1.76	2.1	1	300
14	30	20	4.83	2.23	2.2	1	300
15	40	10	5.77	2.52	2.3	1	300
16	20	20	2.56	1.17	2.2	1	300
17	30	10	3.45	1.44	2.4	1	300
18	20	0	1.18	0.75	1.6	2	300
19	30	0	2.22	1.36	1.6	2	300
20	40	0	3.52	1.70	2.1	2	300
21	20	0	1.15	0.66	1.7	2	900
22	30	0	2.18	1.21	1.8	2	900
23	20	0	1.26	0.82	1.5	1	300
24	30	0	2.30	1.38	1.7	1	300
25	40	0	3.43	1.83	1.9	1	300
26	20	0	1.35	0.80	1.7	1	900
27	30	0	2.10	1.22	1.7	1	900
28	40	0	3.66	1.72	2.1	1	900
29	20	0	1.52	1.00	1.5	1	300
30	30	0	2.87	1.65	1.7	1	300
31	40	0	4.07	2.04	2.0	1	300
32	20	0	1.39	0.90	1.6	1	900
33	30	0	2.47	1.47	1.7	1	900
34	20	0	1.42	0.90	1.6	2	300
35	30	0	2.57	1.61	1.6	2	300
36	20	0	1.61	0.95	1.7	2	900
37	30	0	2.45	1.45	1.7	2	900

[0476]

[0477]

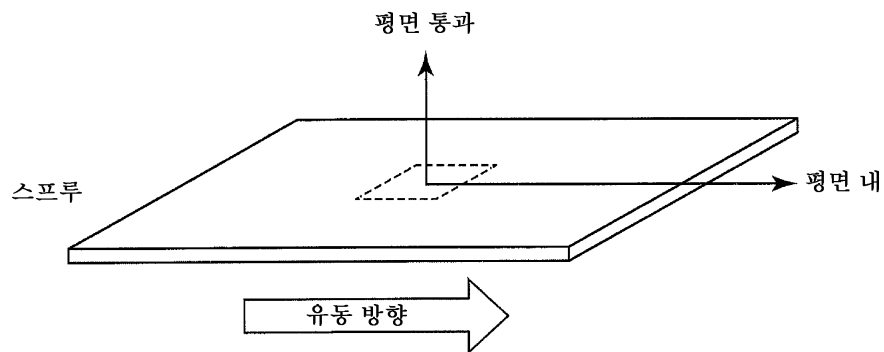
[표 2]

참고예 번호	일차 질화붕소 입자 [부피 %]	제 2 충전재 [부피 %]	평면 내 열전도율 [W/m*K]	평면 통과 열전도율 [W/m*K]	이방성 비	스크루 구성	스크루 속도 [RPM]
1	30	0	3.98	0.82	4.9	1	900
2	40	0	6.72	0.95	7.1	1	900
3	50	0	9.5	1.01	9.4	1	900
4	0	10	0.46	0.38	1.2	1	300
5	0	20	0.74	0.56	1.3	1	300
6	0	30	1.01	0.77	1.3	1	300
7	0	40	1.43	1.05	1.4	1	300
8	0	50	1.93	1.54	1.3	1	300
9	0	10	0.43	0.38	1.1	1	300
10	0	20	0.70	0.52	1.3	1	300
11	0	30	0.94	0.68	1.4	1	300
12	0	40	1.38	0.89	1.5	1	300

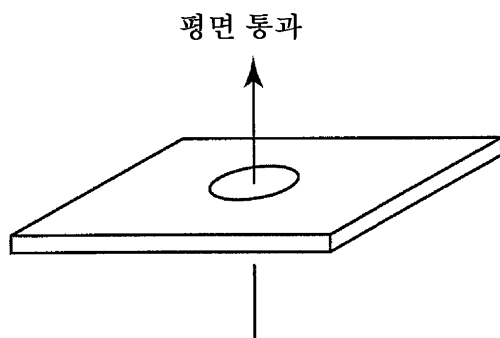
[0478]

도면

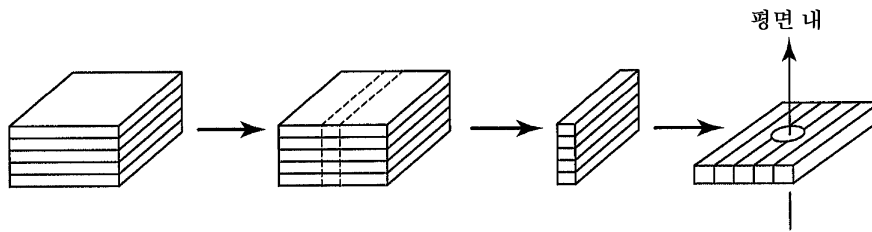
도면1



도면2a



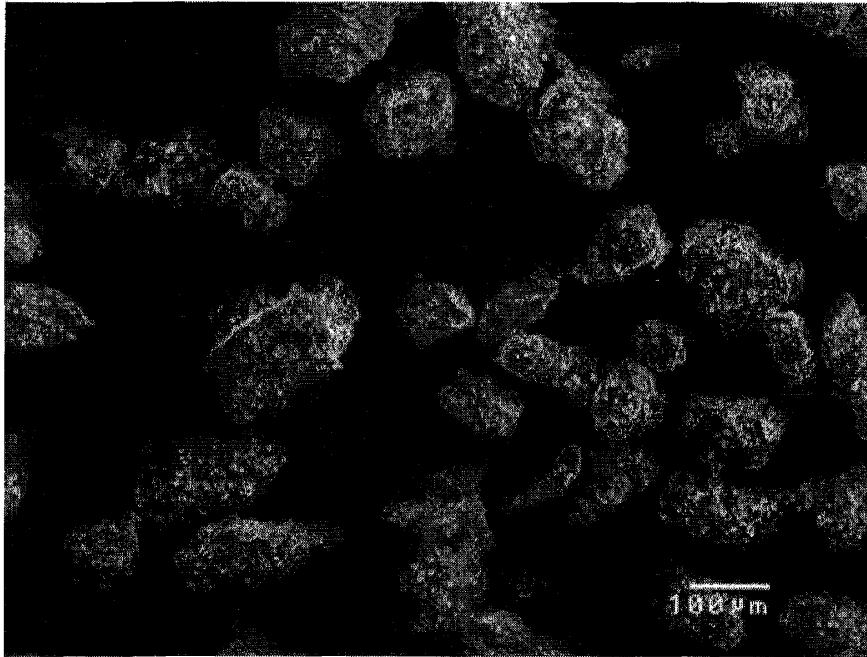
도면2b



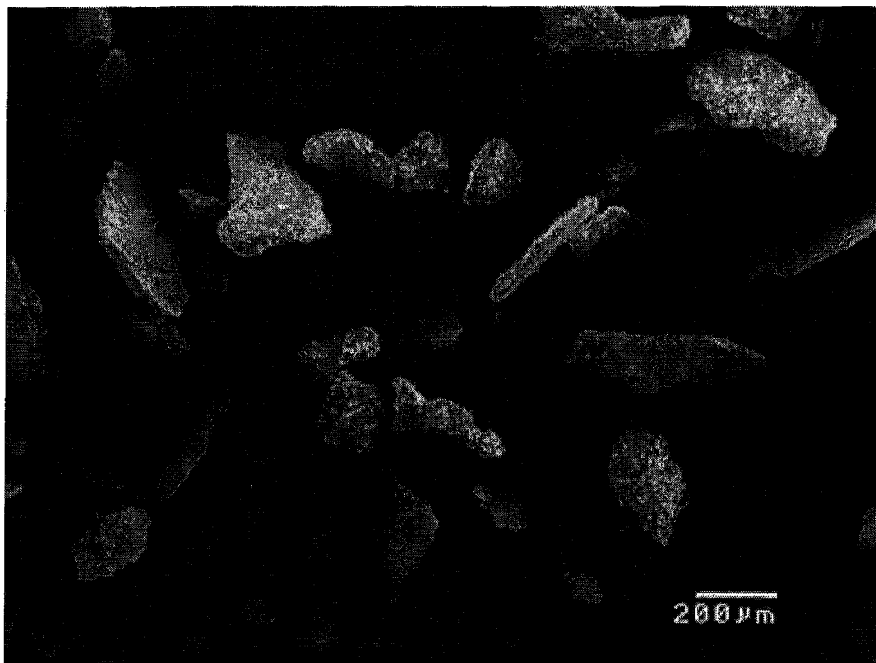
도면3a



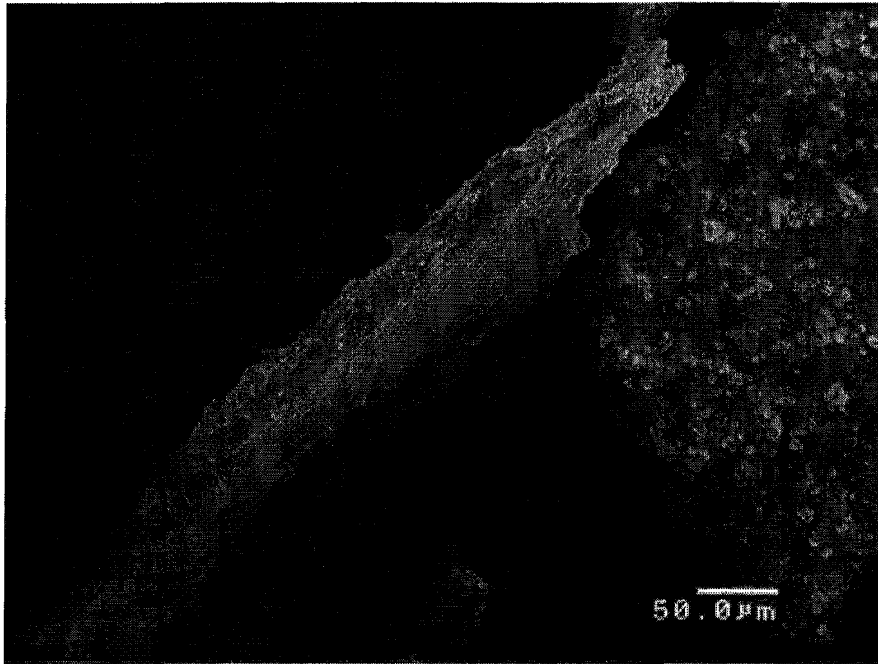
도면3b



도면4a



도면4b



도면5

