

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2018년 4월 26일 (26.04.2018) **WIPO | PCT**



(10) 국제공개번호
WO 2018/074889 A2

- (51) 국제특허분류:
C04B 35/52 (2006.01) *C04B 41/83* (2006.01)
C04B 35/622 (2006.01) *C01B 32/20* (2017.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2017/011669
- (22) 국제출원일: 2017년 10월 20일 (20.10.2017)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2016-0137698 2016년 10월 21일 (21.10.2016) KR
- (71) 출원인: 에스케이씨 주식회사 (SKC CO., LTD.) [KR/KR]; 16336 경기도 수원시 장안구 장안로 309번길 84, Gyeonggi-do (KR).
- (72) 발명자: 서정두 (SEO, Jung Doo); 16307 경기도 수원시 장안구 송정로 83, 102-904, Gyeonggi-do (KR). 김정규 (KIM, Jung-Gyu); 16327 경기도 수원시 장안구 천천로 74번길 35, 816-202, Gyeonggi-do (KR). 백종갑 (BAEK, Jonggab); 16691 경기도 수원시 영통구 영통로154번길 56, 102-1201, Gyeonggi-do (KR).
- (74) 대리인: 제일특허법인 (FIRSTLAW P.C.); 06775 서울 서초구 마방로 60, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC,

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

- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 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, 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).

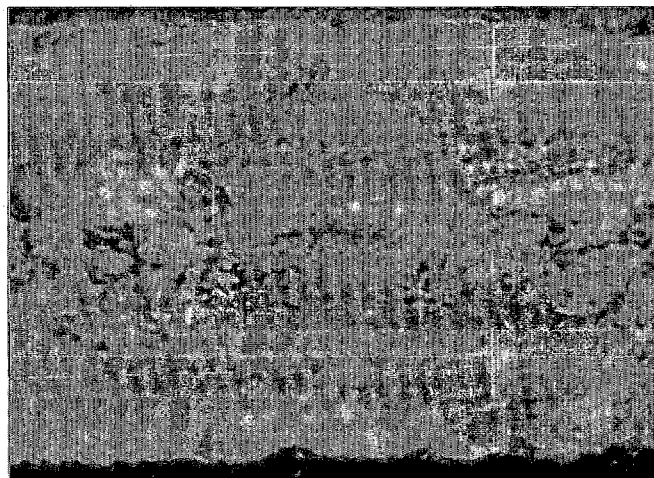
공개:

- 국제조사보고서 없이 공개하며 보고서 접수 후 이를 별도 공개함 (규칙 48.2(g))

(54) Title: METHOD FOR PREPARING GRAPHITE SHEET

(54) 발명의 명칭: 그래파이트 시트의 제조방법

[도 4]



(57) Abstract: An embodiment relates to a method capable of preparing a graphite sheet having high thermal conductivity at a low cost without using expensive polyimide film.

(57) 요약서: 실시예는 고가의 폴리이미드 필름을 사용하지 않고 저렴한 비용으로 높은 열 전도도를 갖는 그래파이트 시트를 제조할 수 있는 방법에 관한 것이다.



WO 2018/074889 A2

명세서

발명의 명칭: 그라파이트 시트의 제조방법

기술분야

- [1] 실시에는 높은 열전도도를 갖는 그라파이트 시트를 간편하면서도 경제적으로 제조하는 방법에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 최근 전자기기 기술 발달과 더불어 기기 자체가 탄소박형화되는 추세에 비추어 볼 때, 디바이스의 열을 효과적으로 방출하는 것은 필수적이다. 이를 위해 다양한 방열 소재들이 개발되고 있으며, 방열 패드, 방열 시트, 방열 도료 등의 형태로 시판되고 있다. 그 중 방열 시트는 그라파이트 시트, 고분자-세라믹 복합시트, 다층코팅 금속박막 시트 등의 형태로 제작되고 있는데, 그라파이트 시트의 경우 경량이고 슬립하면서도 열전도도가 구리 이상으로 매우 높아, 전자 회로를 구성하는 기관과 기관 사이, 플라즈마 텔레비전 등을 구성하는 PDP 등에 유용하게 사용되고 있다.
- [3] 필름 형상 그라파이트의 제조 방법의 대표예로서, "익스펜드(팽창) 그라파이트법"이라고 불리는 방법이 있다. 이 방법에서는, 천연 그라파이트를 진한 황산과 진한 초산의 혼합액에 침지시킨 후 급격히 가열함으로써 그라파이트를 팽창시킨다. 이후 팽창된 그라파이트를 세정하여 산을 제거하고, 고압 프레스에 의하여 필름 형상으로 가공하여 필름 형상 그라파이트를 제조한다. 그러나 상기 방법으로 제조된 필름 형상 그라파이트는 강도가 약하고 다른 물리적 특성도 우수하지 않으며, 잔류 산을 포함하는 문제점이 있었다.
- [4] 이와 같은 문제를 해결하기 위하여, 특수한 고분자 필름을 직접 열처리하여 그라파이트화하는 방법이 개발되었다(이하, "고분자 그라파이트화법"이라 지칭함). 상기 고분자 필름으로는, 폴리옥사디아졸, 폴리이미드, 폴리페닐렌비닐렌, 폴리벤조이미다졸, 폴리벤조옥사졸, 폴리티아졸 및 폴리아미드 필름 등을 들 수 있다. 고분자 그라파이트화법은 종래의 익스펜드 그라파이트법과 비교하여 훨씬 간단하다. 또한, 본질적으로 산 등의 불순물의 혼입을 일으키지 않으면서 단결정 그라파이트에 가까운 우수한 열전도성 및 전기전도성을 갖는 그라파이트 시트를 제공한다(일본 공개특허공보 평7-109171 및 일본 공개특허공보 소61-275116 참조).

[5]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [6] 그러나, 고분자 그라파이트화법의 경우, 익스펜드 그라파이트법에 비해 두꺼운 필름 형상의 그라파이트를 얻는 것이 어렵고, 제조 비용이 비싸다는 문제점이 있었다.

- [7] 따라서, 실시예는 고가의 폴리이미드 필름을 사용하지 않고도 높은 열전도도를 갖는 그라파이트 시트를 비교적 두꺼운 두께로 간편하면서도 경제적으로 제조할 수 있는 방법을 제공하고자 한다.

[8]

과제 해결 수단

- [9] 상기 목적을 달성하기 위해, 일 실시예에 따르면,
- [10] (a) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;
- [11] (b) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 코팅하는 단계; 및
- [12] (c) 상기 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,
- [13] 상기 코팅액이 액상 수지, 용제, 탈수제 및 촉매를 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법이 제공된다.
- [14] 다른 실시예에 따르면,
- [15] (1) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;
- [16] (2) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 1차 코팅하는 단계;
- [17] (3) 상기 1차 코팅된 기재를 상기 코팅액으로 2차 코팅하는 단계; 및
- [18] (4) 상기 2차 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,
- [19] 상기 1차 코팅을 0.1 MPa 이상의 압력으로 스퀴징(squeezing)하여 수행하는, 그라파이트 시트의 제조방법이 제공된다.
- [20] 또 다른 실시예에 따르면,
- [21] 다공성 기재의 내부 또는 외부에 액상 수지를 포함하는 코팅액을 배치시키는 단계;
- [22] 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액 내의 기포를 제거하는 단계; 및
- [23] 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액을 흑연화하는 단계를 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법을 제공한다.

[24]

발명의 효과

- [25] 실시예에 따른 그라파이트 시트의 제조방법에 따르면, 높은 열전도도를 갖는 그라파이트 시트를 비교적 두꺼운 두께로 간편하게 제조할 수 있다. 또한, 상기 제조방법은 고가의 폴리이미드 필름을 대신하여 비교적 저렴한 섬유 기재를 사용하므로, 상기 제조방법에 따르면, 보다 경제적으로 그라파이트 시트를 제조할 수 있다.
- [26] 또한, 실시예에 따른 그라파이트 시트의 제조방법은 섬유 기재 등과 같은 다공성 기재의 내부 또는 외부에 코팅액을 배치시키고, 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액에 포함된 기포를 제거한다. 이에 따라서, 흑연화 공정 전의 다공성 기재와 코팅액의 복합 시트는 치밀한 구조를 가질 수 있다. 따라서, 흑연화 공정 이후의 최종적으로 제조된 그라파이트 시트 내의 공극이 최대한 억제될 수 있다.
- [27] 이로 인해, 실시예에 따른 그라파이트 시트는 높은 밀도를 갖고, 향상된

열전도율을 가질 수 있다.

[28]

도면의 간단한 설명

[29] 도 1 및 3은 각각 비교예 2의 그라파이트 시트의 표면 및 단면 확대 사진이다.

[30] 도 2 및 4는 각각 실시예 2의 그라파이트 시트의 표면 및 단면 확대 사진이다.

[31] 도 5는 일례에 따른 1차 코팅의 모식도로서, 스퀴즈 롤을 이용한 코팅시의 모식도이다.

[32] 도 6은 일례에 따른 2차 코팅의 모식도이다.

[33]

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[34] 실시예의 설명에 있어서, 각 필름, 막, 패넌, 또는 층 등이 각 필름, 막, 패넌, 또는 층 등의 "상(on)" 또는 "하(under)"에 형성되는 것으로 기재되는 경우에 있어, "상(on)"과 "하(under)"는 "직접(directly)" 또는 "다른 구성요소를 개재하여(indirectly)" 형성되는 것을 모두 포함한다. 또한 각 구성요소의 상/하에 대한 기준은 도면을 기준으로 설명한다. 도면에서의 각 구성요소들의 크기는 설명을 위하여 과장될 수 있으며, 실제로 적용되는 크기를 의미하는 것은 아니다.

[35]

[36] 실시예의 그라파이트 시트의 제조방법은 (a) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;

[37] (b) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 코팅하는 단계; 및

[38] (c) 상기 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,

[39] 상기 코팅액이 액상 수지, 용제, 탈수제 및 촉매를 포함한다.

[40]

단계 (a)

[42] 본 단계에서는 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공한다. 상기 기재는 많은 공극을 가질 수 있다. 즉, 상기 기재는 다공성 기재일 수 있다.

[43] 통상적으로 천연 섬유는 크게 셀룰로오스 섬유, 단백질 섬유 및 광물성 섬유로 나눌 수 있다. 상기 셀룰로오스 섬유는 (i) 면 또는 케이폭 등과 같은 종자섬유; (ii) 아마, 저마, 대마, 또는 황마 등과 같은 줄기섬유; (iii) 야자섬유와 같은 과실섬유; 및 (iv) 마닐라마, 아바카 또는 사이잘마와 같은 잎섬유를 포함할 수 있다. 또한, 상기 단백질 섬유는 (i) 양모 섬유, (ii) 견 섬유 및 (iii) 헤어 섬유를 포함할 수 있다. 실시예에 따른 그라파이트 시트를 구성하는 기재가 천연 섬유로 이루어진 경우, 상기 천연 섬유는 면, 마, 모 및 견으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상일 수 있다.

[44] 통상적으로 인조 섬유는 크게 유기질 섬유 및 무기질 섬유로 나눌 수 있다. 상기 유기질 섬유는 (i) 레이온, 텐셀(라이오셀), 모달 등과 같은 셀룰로오스계 섬유, 및

단백질계 섬유를 포함하는 재생 섬유; (ii) 아세테이트, 트리아세테이트 등과 같은 셀룰로오스계 섬유를 포함하는 반합성 섬유; 또는 (iii) 폴리아미드계 섬유, 폴리에스테르계 섬유, 폴리우레탄계 섬유, 폴리에틸렌계 섬유, 폴리염화비닐계 섬유, 폴리플루오로에틸렌계 섬유, 폴리비닐알코올계 섬유, 아크릴계 섬유 또는 폴리프로필렌계 섬유와 같은 합성 섬유를 포함할 수 있다. 실시예에 따른 그라파이트 시트를 구성하는 기재가 인조 섬유로 이루어진 경우, 상기 인조 섬유는 나일론, 폴리에스테르, 폴리우레탄, 폴리에틸렌, 폴리염화비닐, 폴리플루오로에틸렌, 폴리비닐알코올, 아크릴 및 폴리프로필렌으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 합성 섬유; 또는 레이온, 아세테이트 및 트리아세테이트로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 셀룰로오스계 섬유일 수 있다.

[45] 상기 종이는 통상적으로 구매 또는 제조할 수 있는 것이라면 특별히 제한하지 않는다.

[46]

[47] 단계 (b)

[48] 본 단계에서는 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 코팅한다.

[49] 상기 코팅액은 액상 수지, 용제, 탈수제 및 촉매를 포함한다. 구체적으로, 상기 코팅액은 70 내지 85 중량%의 액상 수지, 2 내지 10 중량%의 용제, 10 내지 20 중량%의 탈수제 및 1 내지 5 중량%의 촉매를 포함할 수 있다.

[50] 상기 액상 수지는 폴리아미드, 폴리아믹산, 폴리염화비닐, 폴리에스테르, 폴리우레탄, 폴리에틸렌, 폴리플루오르에틸렌, 폴리비닐알코올, 아크릴 및 폴리프로필렌으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 수지를 포함하는 조성물일 수 있다. 구체적으로, 상기 액상 수지는 폴리아미드, 폴리아믹산 및 폴리염화비닐로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 수지를 포함할 수 있다. 보다 구체적으로, 상기 액상 수지는 200,000 내지 300,000 g/mol의 중량평균분자량을 갖는 폴리아믹산을 포함할 수 있다.

[51] 즉, 상기 액상수지는 폴리아믹산 등의 수지를 포함하는 고형분 및 유기 용매 등의 액체 성분을 포함할 수 있다. 상기 액상 수지의 고형분 함량은 액상 수지 총 중량을 기준으로 15 내지 25 중량%일 수 있다.

[52] 상기 코팅액은 70 내지 85 중량%, 구체적으로 70 내지 80 중량%의 액상 수지를 포함할 수 있다.

[53]

[54] 상기 탈수제는 무수초산(acetic anhydride)일 수 있다.

[55] 상기 코팅액은 10 내지 20 중량%, 구체적으로 12 내지 16 중량%의 탈수제를 포함할 수 있다. 상기 코팅액이 상기 범위 내의 함량으로 탈수제를 포함할 경우, 우수한 탈수 효과 및 적절한 이미드화 속도로 인해 작업성이 향상될 수 있다.

[56]

[57] 상기 촉매는 3-메틸피리딘 및 아이소퀴놀린으로 이루어진 군으로부터 선택된

1종 이상을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 촉매는 3-메틸피리딘 또는 아이소퀴놀린일 수 있다.

- [58] 상기 코팅액은 1 내지 5 중량%, 구체적으로 1 내지 2.5 중량%의 촉매를 포함할 수 있다. 상기 코팅액이 상기 범위 내의 함량으로 촉매를 포함할 경우, 배향성 효과가 증가하여 제조된 그라파이트 시트의 열 물성이 우수하고, 적절한 이미드화 속도로 인해 작업성이 향상될 수 있다.

[59]

- [60] 상기 용제는 디메틸포름아미드, n-메틸피롤리돈, 디메틸아세트아미드 및 디메틸설폭사이드로 이루어진 군으로부터 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 용제는 디메틸포름아미드, n-메틸피롤리돈, 디메틸아세트아미드 또는 디메틸설폭사이드일 수 있다.

- [61] 상기 코팅액은 2 내지 10 중량%, 구체적으로 4 내지 6 중량%의 용제를 포함할 수 있다. 상기 코팅액이 상기 범위 내의 함량으로 용제를 포함할 경우, 코팅액의 높은 점도로 인해 코팅액의 탈포가 어려운 문제 및 코팅 두께의 제어가 어려운 문제를 방지할 수 있다.

[62]

- [63] 상기 코팅은 통상적으로 기재를 코팅하는데 사용하는 방법이라면 특별히 제한하지 않는다. 예를 들어, 상기 코팅은 압연 공정, 바(bar) 공정, 딥 코팅 공정, 스프레이 코팅 공정 등을 통해 수행할 수 있다. 구체적으로, 상기 코팅은 상기 기재의 일면 또는 양면에 코팅액을 도포하고 기재를 서로 대응하는 상, 하 롤 사이로 통과시키는 공정을 통해 수행할 수 있다. 이때, 기재의 코팅면에 폴리에스테르 보호 필름을 위치시킨 후 기재와 보호 필름 사이에 코팅액을 주입하면서 상기 롤 사이를 통과시킬 수 있다.

- [64] 상기 코팅시 기재를 0.1 내지 1 g/cm²의 코팅액으로 코팅할 수 있다. 구체적으로, 상기 코팅시 기재를 0.2 내지 0.5 g/cm²의 코팅액으로 코팅할 수 있다.

[65]

- [66] 필요에 따라, 상기 단계 (b)에서, 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 1차 코팅한 후, 1차 코팅된 기재를 상기 코팅액으로 2차 코팅할 수 있다. 상기 1차 코팅은 기재(섬유) 사이에 코팅액을 충전하여 기재 표면을 평탄하게 하기 위함이고, 상기 2차 코팅은 시트의 두께를 제어하고 밀도를 향상시키기 위함이다.

- [67] 상기 1차 코팅시 기재 표면을 편평하게 만드는데 필요한 양의 코팅액으로 코팅할 수 있다.

- [68] 상기 2차 코팅은 1 내지 3회 반복하여 수행할 수 있다. 또한, 상기 2차 코팅시 1차 코팅된 기재에 0.1 내지 0.3 g/cm²의 코팅액을 코팅할 수 있다.

[69]

- [70] 상기 코팅액이 액상 수지로 폴리아믹산을 포함할 경우, (b) 단계 이후 및 (c) 단계 이전에, 이미드화 단계를 추가로 포함할 수 있다.

[71] 상기 이미드화는 100 내지 600 °C에서 수행할 수 있다. 구체적으로, 상기 이미드화는 100 내지 600 °C에서 20 내지 25 분 동안 수행할 수 있다.

[72]

[73] 단계 (c)

[74] 본 단계에서는 상기 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시킨다.

[75] 상기 열처리는 900 내지 3,000 °C에서 1 내지 20 시간 동안 수행할 수 있다. 구체적으로, 상기 열처리는 1,000 내지 1,600 °C에서 0.5 내지 10 시간 동안 1차 열처리 후 승온하여 2,600 내지 2,900 °C에서 0.5 내지 10 시간 동안 2차 열처리하는 공정을 포함할 수 있다. 상술한 바와 같이 2차로 열처리할 경우, 상대적으로 낮은 온도에서 탄화 처리한 다음 상대적으로 높은 온도에서 흑연화 처리를 수행함으로써, 제조된 그래파이트 시트의 흑연화도를 높일 수 있다.

[76]

[77] 상기 제조방법은 (c) 단계 이후, (d) 흑연화된 시트를 압연하는 단계를 추가로 포함할 수 있다.

[78] 상기 압연은 20 내지 50 N/cm²의 압력으로 수행할 수 있다. 또한, 상기 압연은 1 내지 3회 반복 수행할 수 있다. 1차 압연은 흑연화된 시트의 표면 평탄화가 목적이며, 2차 압연은 흑연화된 시트의 두께를 목적 두께로 조절하기 위한 것이고, 3차 압연은 흑연화된 시트의 밀도 향상이 목적일 수 있다.

[79]

[80] 상기 그래파이트 시트의 제조방법에 따르면, 고가의 폴리이미드 필름을 사용하지 않고도 높은 열전도도 및 낮은 저항을 갖는 그래파이트 시트를 간편하면서도 경제적으로 제조할 수 있다.

[81] 상술한 바와 같은 제조방법으로 제조된 그래파이트 시트는 900 W/m·K 이상의 높은 열전도도 및 1,000 MΩ 미만의 낮은 저항을 가지며, 0.01 내지 0.3 mm의 두께를 가질 수 있다.

[82]

[83] 실시예의 그래파이트 시트의 제조방법은 (1) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;

[84] (2) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 1차 코팅하는 단계;

[85] (3) 상기 1차 코팅된 기재를 상기 코팅액으로 2차 코팅하는 단계; 및

[86] (4) 상기 2차 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,

[87] 상기 1차 코팅은 0.1 MPa 이상의 압력으로 스퀴징(squeezing)하여 수행한다.

[88]

[89] 단계 (1)

[90] 본 단계에서는 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공한다. 상기 천연 섬유, 인조 섬유 및 종이는 상기 단계 (a)에서 정의한 바와 같다.

[91]

[92] 단계 (2)

- [93] 본 단계에서는 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 1차 코팅한다.
- [94] 상기 1차 코팅공정은 다음과 같은 과정에 의해서 진행될 수 있다.
- [95] 먼저, 상기 기재의 일면 또는 양면에 상기 코팅액이 분사되며, 상기 코팅액은 상기 기재의 내부 및/또는 외부에 배치될 수 있다. 또한, 상기 코팅액이 상기 기재의 상하면에 배치되고, 일부는 상기 기재의 내부에 스며들 수도 있다.
- [96] 이후, 상기 기재 및 상기 코팅액의 내부의 기포가 제거된다. 상기 기포 제거 공정은 스퀴징 공정으로 정의될 수 있다.
- [97] 상기 기포 제거 공정은 0.1 MPa 이상의 압력으로 스퀴징(squeezing)하여 수행한다. 구체적으로, 상기 기재의 일면 또는 양면에 코팅액을 도포하고 기재를 서로 대응하는 상, 하 스퀴즈 롤 사이로 0.1 MPa 이상의 압력으로 가압하면서 통과시켜 상기 1차 코팅을 수행할 수 있다. 이때, 기재의 코팅면에 폴리에스테르 보호 필름을 위치시킨 후 기재와 보호 필름 사이에 코팅액을 주입하면서 상기 스퀴즈 롤 사이를 통과시킬 수 있다. 보다 구체적으로, 상기 코팅액이 도포된 기재를 스퀴즈 롤 사이로 통과시킬 때 기재 내부의 기포가 제거될 수 있다.
- [98] 상기 스퀴징 공정에 의해서, 상기 기재의 외부의 코팅액은 상기 기재 내부로 더 잘 스며들게 될 수 있다. 즉, 상기 기재 내부에 상기 코팅액이 일부 함침되거나, 전혀 함침되지 않았을 때, 상기 스퀴징 공정에 의해서, 상기 코팅액은 상기 기재 내부 공극을 모두 채울 수 있다.
- [99] 도 5를 참조하면, 상기 1차 코팅은 기재(200)의 양면에 폴리에스테르 보호 필름(400)을 위치시킨 후 기재와 보호 필름 사이에 코팅액(300)을 주입하면서 스퀴즈 롤(510, 520) 사이를 통과시켜 수행할 수 있다.
- [100] 또한, 상기 1차 코팅은 0.1 MPa 이상의 압력으로 스퀴징하여 수행하며, 구체적으로, 0.1 내지 0.3 MPa 압력으로 스퀴징하여 수행할 수 있다.
- [101]
- [102] 상기 코팅액은 70 내지 85 중량%의 액상 수지, 2 내지 10 중량%의 용제, 10 내지 20 중량%의 탈수제 및 1 내지 5 중량%의 촉매를 포함할 수 있다. 상기 액상 수지, 용제, 탈수제 및 촉매는 상기에서 정의한 바와 같다.
- [103] 상기 1차 코팅시 기재를 0.1 내지 1 g/cm²의 양으로 코팅할 수 있다. 구체적으로, 상기 1차 코팅시 기재를 0.2 내지 0.5 g/cm²의 양으로 코팅할 수 있다.
- [104] 상기 1차 코팅시 코팅층의 두께는 30 내지 50 μ m일 수 있다.
- [105] 상기 1차 코팅 공정이 완료된 기재 및 코팅액의 총 두께는 80 내지 250 μ m일 수 있다.

[106]

[107] 단계 (3)

[108] 본 단계에서는 상기 1차 코팅된 기재를 상기 코팅액으로 2차 코팅한다.

[109] 상기 1차 코팅된 기재의 일면 또는 양면에 코팅액을 도포하고 기재를 서로 대응하는 상, 하 롤 사이로 통과시켜 상기 2차 코팅을 수행할 수 있다. 이때, 상기 1차 코팅된 기재의 코팅면에 폴리에스테르 보호 필름을 위치시킨 후 1차 코팅된

기재와 보호 필름 사이에 코팅액을 주입하면서 상기 롤 사이를 통과시킬 수 있다.

[110] 도 6을 참조하면, 상기 2차 코팅은 1차 코팅된 기재(210)의 양면에 폴리에스테르 보호 필름(400)을 위치시킨 후 1차 코팅된 기재와 보호 필름 사이에 코팅액(300)을 주입하면서 롤(610, 620) 사이를 통과시켜 수행할 수 있다.

[111] 상기 2차 코팅시 1차 코팅된 기재에 코팅액을 0.1 내지 0.5 g/cm²의 양으로 코팅할 수 있다. 구체적으로, 상기 2차 코팅시 1차 코팅된 기재에 코팅액을 0.1 내지 0.3 g/cm²의 양으로 코팅할 수 있다.

[112] 이에 따라서, 상기 기재의 상면 및/또는 하면에 코팅층이 형성된다. 상기 코팅층을 형성하기 위한 코팅액은 상기 1차 코팅 공정에서 사용되는 코팅액과 실질적으로 동일할 수 있다.

[113] 상기 2차 코팅시 코팅층의 두께는 30 내지 50 μ m일 수 있다. 또한, 상기 2차 코팅시 코팅층이 상기 기재의 상면 및 하면에 형성되는 경우, 상기 코팅층의 총 두께(1차 코팅층 및 2차 코팅층의 두께)은 60 내지 100 μ m일 수 있다.

[114] 또한, 상기 2차 코팅 공정이 완료된 기재 및 코팅층의 총 두께는 140 내지 350 μ m일 수 있다.

[115] 상기 2차 코팅은 시트의 두께를 제어하기 위함이며, 상술한 바와 같은 스쿼즈 롤을 이용한 1차 코팅을 수행하지 않고 상기 2차 코팅과 같은 코팅만 수행할 경우, 양면이 동시 코팅되면서 기재(섬유) 내부의 기포가 제거되지 않아 시트 내부에 기포를 포함한다. 상술한 바와 같이 시트가 내부에 기포를 포함할 경우, 기포가 결함(defect)으로 작용하여 시트의 열전도도를 떨어뜨리는 문제가 발생할 수 있다. 구체적으로는 기포가 공간(공기층)을 만들어서 열확산을 방해하는 인자로 작용함으로써, 시트의 열전도도가 떨어지게 된다.

[116]

[117] 상기 코팅액이 액상 수지로 폴리아믹산을 포함할 경우, (3) 단계 이후 및 (4) 단계 이전에, 이미드화 단계를 추가로 포함할 수 있다.

[118] 상기 이미드화는 100 내지 600 °C에서 수행할 수 있다. 구체적으로, 상기 이미드화는 100 내지 600 °C에서 20 내지 25 분 동안 수행할 수 있다.

[119]

[120] 단계 (4)

[121] 본 단계에서는 상기 2차 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시킬 수 있다.

[122] 상기 열처리는 900 내지 3,000 °C에서 1 내지 20 시간 동안 수행할 수 있다. 구체적으로, 상기 열처리는 1,000 내지 1,600 °C에서 0.5 내지 10 시간 동안 1차 열처리 후 승온하여 2,600 내지 2,900 °C에서 0.5 내지 10 시간 동안 2차 열처리하는 공정을 포함할 수 있다. 상술한 바와 같이 2차로 열처리할 경우, 상대적으로 낮은 온도에서 탄화 처리한 다음 상대적으로 높은 온도에서 흑연화 처리를 수행함으로써, 제조된 그래파이트 시트의 흑연화도를 높일 수 있다.

[123]

- [124] 상기 제조방법은 (4) 단계 이후, (5) 흑연화된 시트를 압연하는 단계를 추가로 포함할 수 있다.
- [125] 상기 압연은 20 내지 50 N/cm²의 압력으로 수행할 수 있다. 또한, 상기 압연은 1 내지 3회 반복 수행할 수 있다. 1차 압연은 흑연화된 시트의 표면 평탄화가 목적이며, 2차 압연은 흑연화된 시트의 두께를 목적 두께로 조절하기 위한 것이고, 3차 압연은 흑연화된 시트의 밀도 향상이 목적일 수 있다.
- [126]
- [127] 일실시예에 따른 그래파이트 시트의 제조방법, 다공성 기재의 내부 또는 외부에 액상 수지를 포함하는 코팅액을 배치시키는 단계;
- [128] 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액 내의 기포를 제거하는 단계; 및
- [129] 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액을 흑연화하는 단계를 포함한다.
- [130] 상기 다공성 기재 및 코팅액은 상기에서 정의한 바와 같다.
- [131] 상기 기포를 제거하는 단계 이후, 상기 다공성 기재의 일면 또는 양면에 코팅층을 형성하는 단계를 더 포함할 수 있고, 상기 흑연화하는 단계에서, 상기 코팅층이 흑연화될 수 있다. 구체적으로, 상기 코팅층은 두께가 30 내지 50 μm 이고, 액상 수지를 포함할 수 있다.
- [132] 상기 흑연화하는 단계의 공정 조건은 상기에서 정의한 바와 같다.
- [133] 상기 기포를 제거하는 단계에서, 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액에 0.1 MPa 이상의 압력이 가해질 수 있다. 상기 기포를 제거하는 단계는 상기 기포 제거 공정에서 정의한 바와 같다.
- [134]
- [135] 상기 그래파이트 시트의 제조방법에 따르면, 기재 내부의 기포를 제거하여 코팅액의 내부 함침도를 향상시킴으로써 높은 열전도도를 갖는 그래파이트 시트를 제조할 수 있다. 또한, 상기 그래파이트 시트의 제조방법에 따르면, 고가의 폴리이미드 필름을 사용하지 않고도 높은 열전도도를 갖는 그래파이트 시트를 간편하면서도 경제적으로 제조할 수 있다.
- [136] 상술한 바와 같은 제조방법으로 제조된 그래파이트 시트는 900 W/m·K 이상의 높은 열전도도를 가지며, 0.01 내지 0.3 mm의 균일한 두께를 가질 수 있다.

[137]

발명의 실시를 위한 형태

- [138] 이하, 본 발명을 하기 실시예를 통해 보다 구체적으로 설명한다. 하기 실시예는 본 발명을 예시하기 위한 것일 뿐, 본 발명의 범위가 이들 실시예로만 한정되는 것은 아니다.
- [139]
- [140] **제조예. 코팅액의 제조**
- [141] 액상 폴리아믹산(제조사: KOLON PI, 제품명: PAA 바니쉬, 중량평균분자량: 250,000 g/mol, 고형분 함량: 18 중량%) 78 중량%, 용제로 디메틸포름아미드 6

중량%, 탈수제로 무수초산 15 중량%, 및 촉매로 3-메틸피리딘 1 중량%를 혼합한 후, 1,500 rpm으로 2 분 동안 분산 처리하여 코팅액을 제조하였다.

[142]

[143] 실시예 1. 그라파이트 시트의 제조

[144] 기재로 면직물(제조사: 한텍스타일, 제품명: 면 100수)을 사용하고, 25 °C에서 상기 기재의 양면에 폴리에틸렌테레프탈레이트 보호 필름(PET)을 위치시킨 후 기재와 보호 필름 사이에 제조예의 코팅액을 주입하면서 압연하여 기재의 양면을 0.3 g/cm²의 코팅액으로 코팅(1차 코팅)하였다. 1차 코팅된 기재에 상술한 바와 동일하게 코팅 공정을 적용하여 기재의 양면을 0.2 g/cm²의 코팅액으로 코팅(2차 코팅)하였다.

[145] 이후 상기 코팅된 기재를 열풍 건조 로(furnace)를 이용하여 약 150 °C에서 10 분, 약 250 °C에서 5 분, 약 400 °C에서 5 분 동안 처리하여 120 μm 두께의 이미드화 기재 필름을 제조하였다.

[146] 상기 이미드화 기재 필름을 질소 분위기(약 100 torr의 압력)에서 1 °C/분의 속도로 승온시켜 최종 온도 약 1,000 °C에서 7 시간 동안 1차 열처리하였다. 이후 5 °C/분의 속도로 승온시켜 약 2,700 °C에서 2 시간 동안 2차 열처리하여 흑연화된 시트를 제조하였다.

[147] 상기 흑연화된 시트를 서로 대응하는 상, 하 롤 사이로 50 N/cm²의 압력으로 가압하면서 통과시켜 압연하였다. 상기 압연은 3회 수행하였으며, 이를 통해 두께 40 μm의 그라파이트 시트를 제조하였다.

[148]

[149] 비교예 1. 인조 그라파이트 시트

[150] 상용화 그라파이트 시트인 Cx사의 SGS 40 μm(제품명)를 사용하였다.

[151]

[152] 실험예 1

[153] 상기 실시예 1 및 비교예 1의 그라파이트 시트를 대상으로 하기 기재된 바에 따라 물성을 측정하였으며, 그 결과는 하기 표 1 및 2에 나타났다.

[154] (1) 비열 및 열확산율

[155] 네취 사의 LFA 447 모델을 사용하여 그라파이트 시트의 50 °C에서의 비열 및 열확산율을 측정하였다.

[156] (2) 밀도

[157] 알파 미라지(Alfa mirage) 사의 아르키메데스 밀도 측정기를 이용하여 그라파이트 시트의 밀도를 측정하였다.

[158] (3) 열전도도

[159] 그라파이트 시트의 열전도도는 열확산율×밀도×비열로 계산하였다.

[160] (4) 인덕턴스값 및 저항값

[161] 6.78 MHz에서 임피던스 분석기(impedance analyzer, 제조사: Agilent 사, 모델명: Agilent 4294A)를 사용하여 측정하였다.

[162] [표1]

	두께	비열(J/g·K)	밀도(g/cm ³)	열확산율(mm ² /s)	열전도도(W/m·K)
실시예 1	40 μm	0.85	1.58	673	903
비교예 1	40 μm	0.85	1.6	603	820

[163] [표2]

	두께	인덕턴스값(nH)	저항값(M Ω)
실시예 1	40 μm	723	935
비교예 1	40 μm	722	1,029

[164]

[165] 표 2에서 보는 바와 같이, 비교예 1의 인조 그래파이트 시트보다 실시예 1의 그래파이트 시트가 낮은 저항을 가짐을 알 수 있었다. 또한, 표 1에서 보는 바와 같이, 실시예 1의 그래파이트 시트는 900 W/m·K을 초과하는 높은 열전도도를 나타냈다.

[166]

[167] 실시예 2

[168] 기재로 면직물(제조사: 한텍스타일, 제품명: 면 100수)을 사용하고, 25 °C에서 상기 기재의 양면에 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 보호 필름을 위치시킨 후 기재와 보호 필름 사이에 코팅액으로서 액상폴리아미산(제조사: KOLON PI, 제품명: PAA 바니쉬)을 주입하면서 스퀴징하여 기재의 양면을 0.3 g/cm³의 코팅액으로 코팅(1차 코팅)하였다. 1차 코팅된 기재의 양면으로부터 PET 보호 필름을 제거하고, 새로운 PET 보호 필름을 위치시킨 후 1차 코팅된 기재와 보호 필름 사이에 상기 코팅액을 주입하면서 압연하여 1차 코팅된 기재의 양면을 0.2 g/cm³의 코팅액으로 코팅(2차 코팅)하였다.

[169] 구체적으로, 도 5를 참조하면, 상기 1차 코팅은 기재(100)를 서로 대응하는 상, 하 스퀴즈 롤(410, 420) 사이로 0.2 MPa의 압력으로 가압하면서 통과시킴으로써 수행하였다. 또한, 도 6을 참조하면, 2차 코팅은 1차 코팅된 기재(110)를 서로 대응하는 상, 하 롤(510, 520) 사이로 통과시킴으로써 수행하였다.

[170] 이후 상기 2차 코팅된 기재를 열풍 건조 로(furnace)를 이용하여 약 150 °C에서 10 분, 약 250 °C에서 5 분, 약 400 °C에서 5 분 동안 처리하여 120 μm 두께의 이미드화 기재 필름을 제조하였다.

[171] 상기 이미드화 기재 필름을 질소 분위기(약 100 torr의 압력)에서 1 °C/분의 속도로 승온시켜 최종 온도 약 1,000 °C에서 7 시간 동안 1차 열처리하였다. 이후 5 °C/분의 속도로 승온시켜 약 2,700 °C에서 2 시간 동안 2차 열처리하여 흑연화된 시트를 제조하였다.

- [172] 상기 흑연화된 시트를 서로 대응하는 상, 하 롤 사이로 50 N/cm²의 압력으로 가압하면서 통과시켜 압연하였다. 상기 압연은 3회 수행하였으며, 이를 통해 두께 40 μ m의 그라파이트 시트를 제조하였다.
- [173]
- [174] **비교예 2**
- [175] 스쿼징하는 1차 코팅을 수행하지 않고 2차 코팅(메인 코팅)만 수행한 것을 제외하고는, 실시예 2와 동일한 방법으로 그라파이트 시트를 제조하였다.
- [176]
- [177] **실험예 2**
- [178] 상기 실시예 2 및 비교예 2의 그라파이트 시트를 대상으로 하기 기재된 바에 따라 물성을 측정하였다. 또한, 실험 샘플은 제조된 그라파이트 시트의 가로×세로를 130 mm × 130 mm로 절단 후 사용하였다. 또한, 물성측정의 결과를 하기 표 3 및 4에 나타냈다.
- [179] (1) 기포 포함 여부 평가
- [180] 그라파이트 시트의 표면을 육안으로 관찰하여 시트의 기포 포함 여부를 평가하였으며, 그 결과를 도 1 및 2에 나타냈다. 또한, 광학 현미경을 이용하여 그라파이트 시트의 20배 확대 단면을 관찰하였으며, 그 결과를 도 3 및 4에 나타냈다.
- [181] 구체적으로, 도 1 및 3은 각각 비교예 2의 그라파이트 시트의 표면 및 단면 확대 사진이고, 도 2 및 4는 각각 실시예 2의 그라파이트 시트의 표면 및 단면 확대 사진이다.
- [182] (2) 코팅층의 두께 편차 및 코팅액의 함침 수준 평가
- [183] 그라파이트 시트를 단면도가 드러나게 절단하고 에폭시 용액(제조사: UNI-LAB & Co. GMBH, 제품명: CO-Cast Resin)과 경화제(제조사: UNI-LAB & Co. GMBH, 제품명: CO-Cast Hardener)를 4:1 중량비로 포함하는 용액을 사용하여 마운팅 시편을 제작하였다. 이후 #2000의 사포로 연마한 다음 광학 현미경을 이용하여 코팅층의 두께 편차 및 코팅액의 함침 수준을 평가하였다.
- [184] (3) 무게
- [185] 그라파이트 시트의 무게는 알파 미라지(Alfa mirage)사의 아르키메데스 밀도 측정기를 이용하여 측정하였다.
- [186] (4) 비열, 밀도, 열확산율 및 열전도도
- [187] 그라파이트 시트의 비열, 밀도, 열확산율 및 열전도도는 실험예 1의 (1) 내지 (3)에 기재된 방법과 동일한 방법으로 측정 또는 계산하였다.

[188] [표3]

분류	비교예 2	실시예 2	비고
코팅층 두께 편차(μm)	$\pm 5 \mu\text{m}$	$\pm 2 \mu\text{m}$	코팅층 균일성 개선($\pm 3 \mu\text{m}$)
함침 수준	부분적 함침 無	대부분 함침 多	광학 현미경 관찰
무게 측정(g)	1.6	1.7	섬유 내부 기포 감소로 인한 함침 증가(무게 증가)
평가 샘플 사이즈(mm × mm)	130 × 130		가로 × 세로

[189] [표4]

	두께	비열(J/g·K)	밀도(g/cm^3)	열 확산율(mm^2/s)	열전도도($\text{W}/\text{m}^*\text{K}$)	비고
실시예 2	40 μm	0.85	1.7	668	965	스퀴징 有
비교예 2	40 μm	0.85	1.61	602	824	스퀴징 無

[190]

[191] 도 1 내지 4 및 표 3에서 보는 바와 같이, 실시예 2의 그라파이트 시트는 기재 내에 코팅액을 함침시키면서 기포를 미리 제거하는 스퀴징 공정(1차 코팅공정)을 거침으로써 기포를 포함하지 않았다. 반면, 비교예 2의 그라파이트 시트는 기재 내에 코팅액 함침이 부분적으로 발생하여 기재 내 기포(도 1의 파란색 동그라미 및 도 3의 100)를 포함하였다. 또한, 비교예 2의 그라파이트 시트에 비해, 실시예 2의 그라파이트 시트는 코팅층의 두께 편차가 2 μm 이내로 균일한 두께의 코팅층을 포함하였다.

[192] 나아가, 표 4에서 보는 바와 같이, 비교예 2의 그라파이트 시트에 비해, 실시예 2의 그라파이트 시트는 열확산율이 현저히 높았다.

[193]

[194] [부호의 설명]

[195] 100: 그라파이트 시트 내의 기포

[196] 200: 기재

[197] 210: 1차 코팅된 기재

[198] 300: 코팅액

[199] 400: 폴리에스테르 보호 필름

[200] 510, 520: 상, 하 스퀴즈 롤

[201] 610, 620: 상, 하 롤

청구범위

- [청구항 1] (a) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;
(b) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 코팅하는 단계; 및
(c) 상기 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,
상기 코팅액이 액상 수지, 용제, 탈수제 및 촉매를 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 2] 제1항에 있어서,
상기 코팅액이 70 내지 85 중량%의 액상 수지, 2 내지 10 중량%의 용제,
10 내지 20 중량%의 탈수제 및 1 내지 5 중량%의 촉매를 포함하는,
그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 3] 제1항에 있어서,
상기 액상 수지가 200,000 내지 300,000 g/mol의 중량평균분자량을 갖는
폴리아믹산을 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 4] 제3항에 있어서,
상기 제조방법이 (b) 단계 이후 및 (c) 단계 이전에, 이미드화 단계를
추가로 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 5] 제4항에 있어서,
상기 이미드화 단계를 100 내지 600 °C에서 수행하는, 그라파이트 시트의
제조방법.
- [청구항 6] 제1항에 있어서,
상기 탈수제가 무수초산(acetic anhydride)인, 그라파이트 시트의
제조방법.
- [청구항 7] 제1항에 있어서,
상기 촉매가 3-메틸피리딘 및 아이소퀴놀린으로 이루어진 군으로부터
선택된 1종 이상을 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 8] 제1항에 있어서,
상기 용제가 디메틸포름아미드, n-메틸피롤리돈, 디메틸아세트아미드 및
디메틸설폭사이드로 이루어진 군으로부터 선택된 1종 이상을 포함하는,
그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 9] 제1항에 있어서,
상기 (c) 단계의 열처리를 900 내지 3,000 °C에서 1 내지 20 시간 동안
수행하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 10] 제1항에 있어서,
상기 제조방법이 (c) 단계 이후, (d) 흑연화된 시트를 압연하는 단계를
추가로 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 11] 제10항에 있어서,
상기 압연을 20 내지 50 N/cm²의 압력으로 수행하는, 그라파이트 시트의

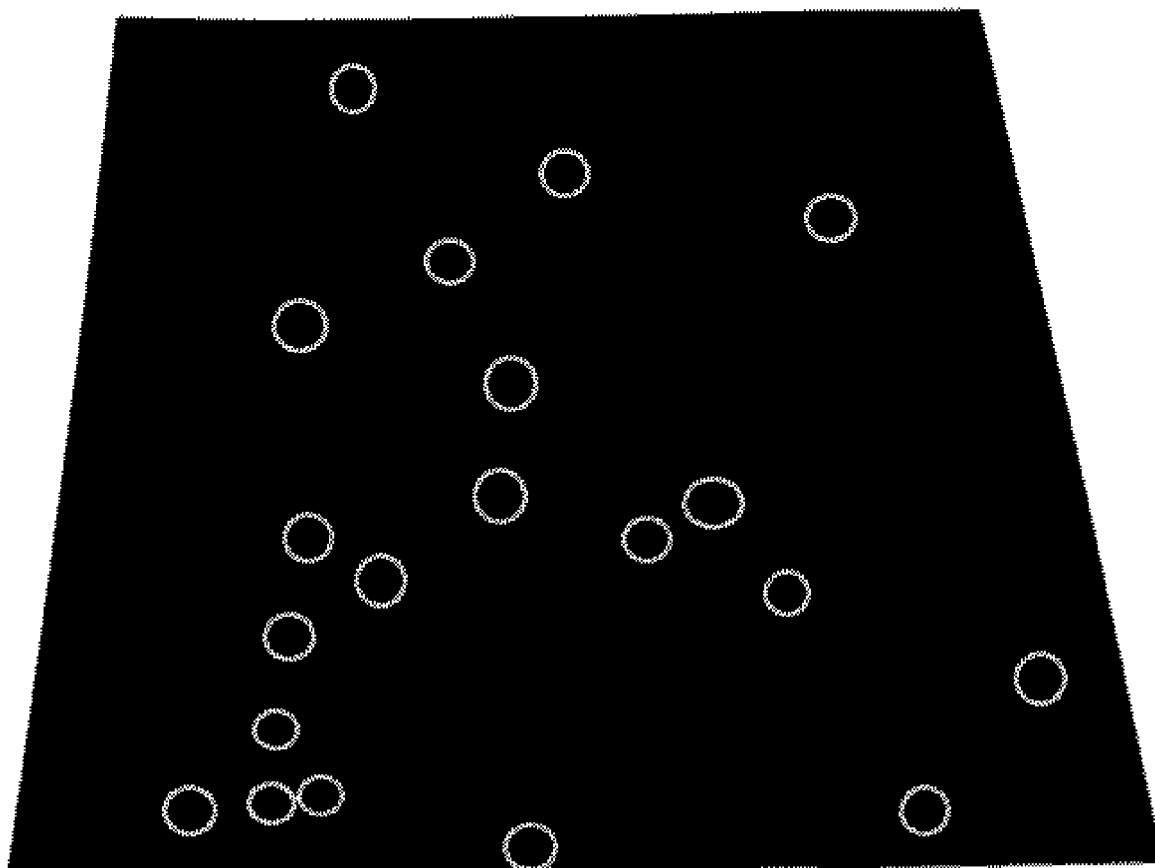
제조방법.

- [청구항 12] (1) 천연 섬유, 인조 섬유 또는 종이를 포함하는 기재를 제공하는 단계;
(2) 상기 기재의 일면 또는 양면을 코팅액으로 1차 코팅하는 단계;
(3) 상기 1차 코팅된 기재를 상기 코팅액으로 2차 코팅하는 단계; 및
(4) 상기 2차 코팅된 기재를 열처리하여 흑연화시키는 단계를 포함하고,
상기 1차 코팅을 0.1 MPa 이상의 압력으로 스퀴징(squeezing)하여 수행하는,
그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 13] 제12항에 있어서,
상기 기재의 일면 또는 양면에 코팅액을 도포하고 기재를 서로 대응하는
상, 하 스퀴즈 롤 사이로 0.1 MPa 이상의 압력으로 가압하면서 통과시켜
상기 1차 코팅을 수행하는, 그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 14] 제13항에 있어서,
상기 기재를 스퀴즈 롤 사이로 통과시킬 때 기재 내부의 기포를 제거하는,
그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 15] 제13항에 있어서,
상기 코팅액이 70 내지 85 중량%의 액상 수지, 2 내지 10 중량%의 용제,
10 내지 20 중량%의 탈수제 및 1 내지 5 중량%의 촉매를 포함하고,
상기 1차 코팅시 기재를 0.1 내지 1 g/cm²의 양으로 코팅하는, 그래파이트
시트의 제조방법.
- [청구항 16] 제13항에 있어서,
상기 1차 코팅된 기재의 일면 또는 양면에 코팅액을 도포하고 기재를
서로 대응하는 상, 하 롤 사이로 통과시켜 상기 2차 코팅을 수행하는,
그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 17] 제16항에 있어서,
상기 2차 코팅시 1차 코팅된 기재를 0.1 내지 0.5 g/cm²의 양으로 코팅하는,
그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 18] 제15항에 있어서,
상기 액상 수지가 200,000 내지 300,000 g/mol의 중량평균분자량을 갖는
폴리아믹산을 포함하고,
상기 제조방법이 (3) 단계 이후 및 (4) 단계 이전에, 이미드화 단계를
추가로 포함하는, 그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 19] 제18항에 있어서,
상기 이미드화 단계를 100 내지 600 °C에서 수행하는, 그래파이트 시트의
제조방법.
- [청구항 20] 제12항에 있어서,
상기 (4) 단계의 열처리를 900 내지 3,000 °C에서 1 내지 20 시간 동안
수행하는, 그래파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 21] 제12항에 있어서,

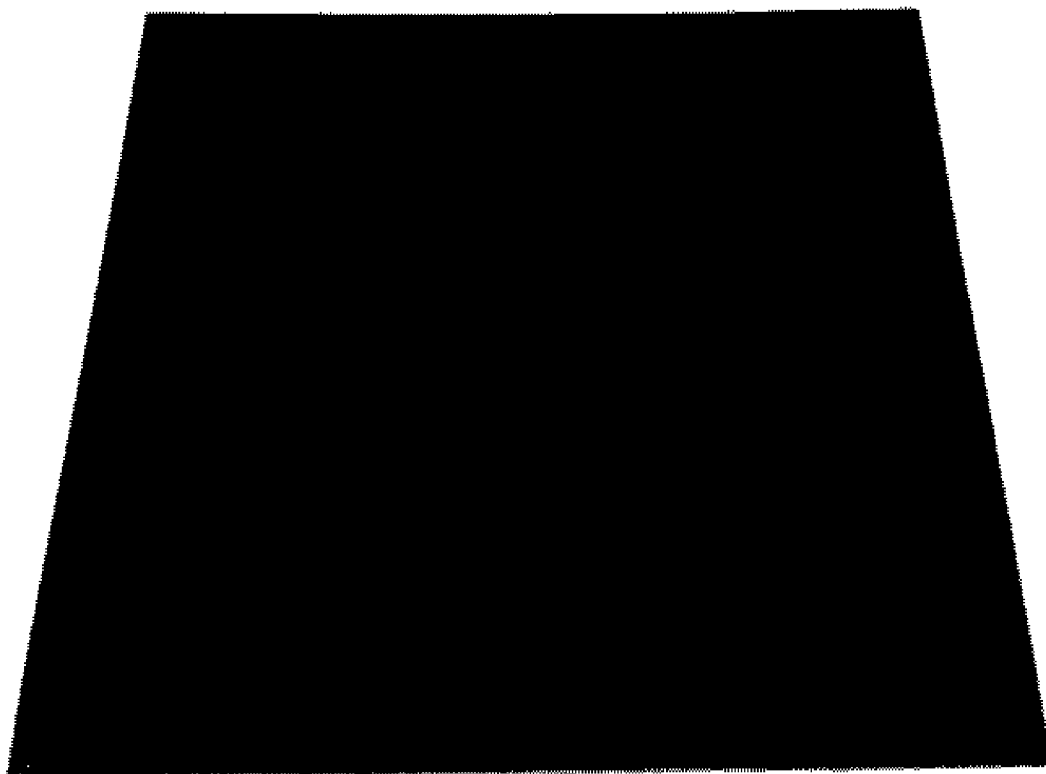
상기 제조방법이 (4) 단계 이후, (5) 흑연화된 시트를 압연하는 단계를 추가로 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.

- [청구항 22] 제21항에 있어서,
상기 압연을 20 내지 50 N/cm²의 압력으로 수행하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 23] 다공성 기재의 내부 또는 외부에 액상 수지를 포함하는 코팅액을 배치시키는 단계;
상기 다공성 기재 및 상기 코팅액 내의 기포를 제거하는 단계; 및
상기 다공성 기재 및 상기 코팅액을 흑연화하는 단계를 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 24] 제 23 항에 있어서,
상기 기포를 제거하는 단계 이후, 상기 다공성 기재의 일면 또는 양면에 코팅층을 형성하는 단계를 더 포함하고,
상기 흑연화하는 단계에서, 상기 코팅층이 흑연화되는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 25] 제 24 항에 있어서,
상기 코팅층은 두께가 30 내지 50 μm 이고, 액상 수지를 포함하는, 그라파이트 시트의 제조방법.
- [청구항 26] 제 23 항에 있어서,
상기 기포를 제거하는 단계에서, 상기 다공성 기재 및 상기 코팅액에 0.1 MPa 이상의 압력이 가해지는, 그라파이트 시트의 제조방법.

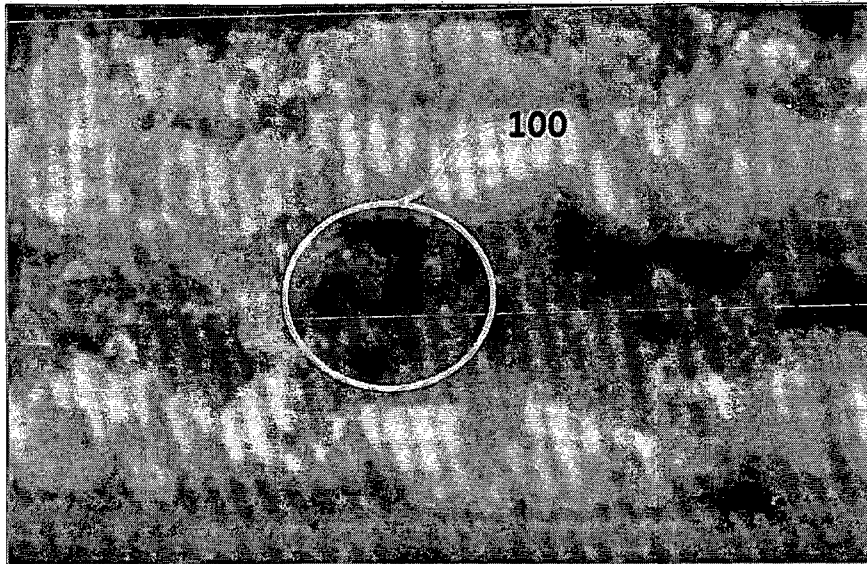
[도1]



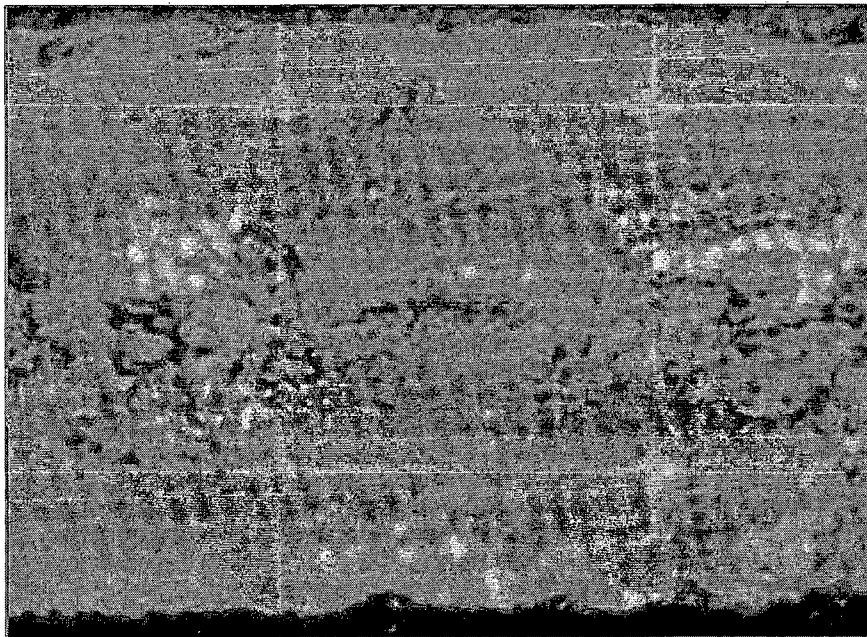
[도2]



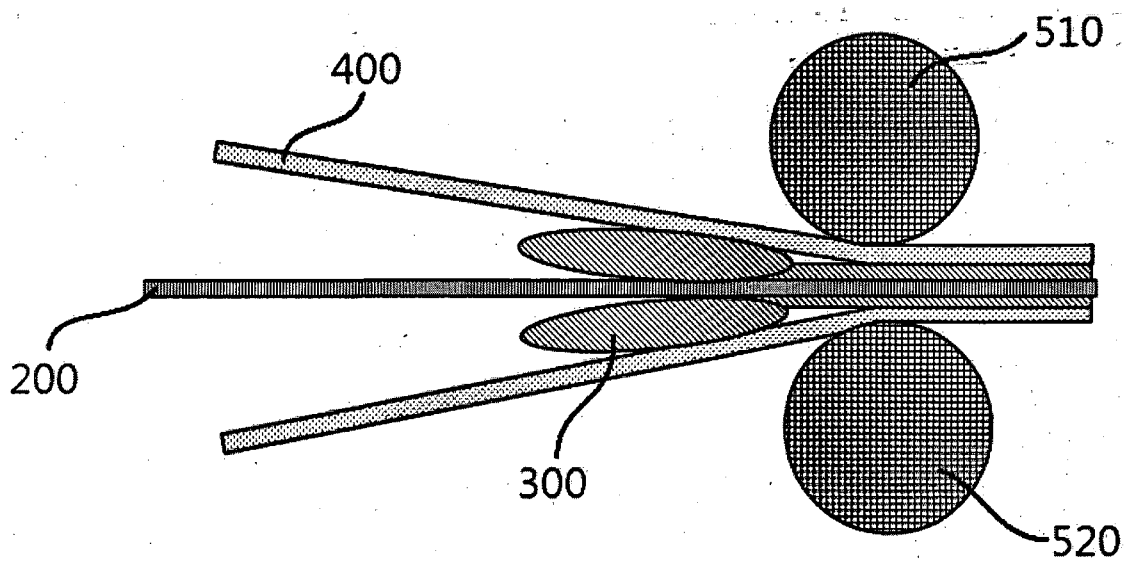
[도 3]



[도 4]



[도 5]



[도 6]

