(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0102752
(43) 공개일자 2025년07월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/04 (2006.01) *C08G 77/16* (2006.01)
C08G 77/20 (2006.01) *C08K 3/04* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) *C08K 5/17* (2006.01)
C08K 9/04 (2006.01) *C08L 83/06* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08L 83/04 (2013.01)
C08G 77/16 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-0194753
(22) 출원일자 2023년12월28일
심사청구일자 2023년12월28일

(71) 출원인
계명대학교 산학협력단
대구광역시 달서구 달구벌대로 1095, 계명대학교 산학협력관 201호(신당동)
(72) 발명자
박현호
대구광역시 달서구 달서대로 719 (신당동, 신당한화 꿈에그린 아파트)
윤상인
대구광역시 달서구 달구벌대로203길 79(호산동) 산호빌 203호
(74) 대리인
특허법인아주

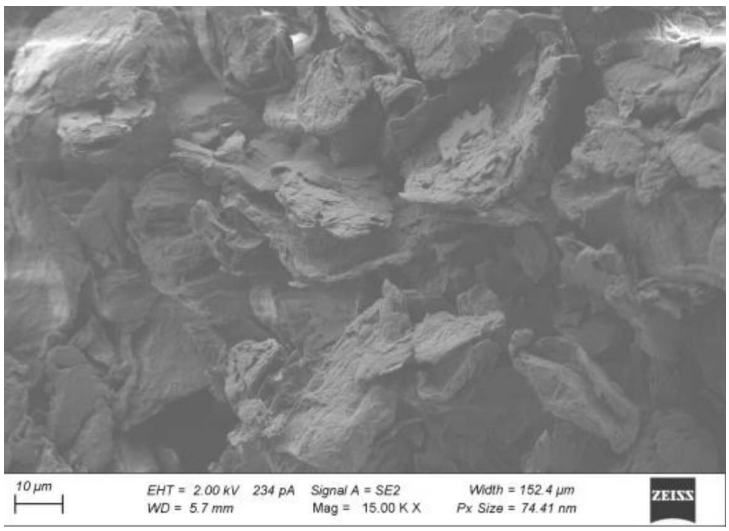
전체 청구항 수 : 총 9 항

(54) 발명의 명칭 **실리콘 및 고분산 그래핀 옥사이드를 이용한 복합소재 조성물 및 이를 이용한 성형체 제조방법**

(57) 요 약

본 발명은 실리콘 및 고분산 그래핀 옥사이드를 이용한 복합소재 조성물 및 이를 이용한 성형체 제조방법에 관한 것이다. 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물은 폴리오르가노실록산 10~40 중량%; 산화알루미늄 50~80 중량%; 가교제 1~5 중량%; 및 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%;를 포함한다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
C08G 77/20 (2013.01)
C08K 3/042 (2017.05)
C08K 3/22 (2013.01)
C08K 5/17 (2013.01)
C08K 9/04 (2013.01)
C08L 83/06 (2013.01)
C08K 2003/2227 (2013.01)
C08K 2201/005 (2013.01)
C08K 2201/006 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1345370668
과제번호	LINC3.0-2023-49
부처명	교육부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	산학연협력고도화지원
연구과제명	전기자동차 이차전지용 방열복합소재 제조기술 연구
기 여 율	1/1
과제수행기관명	계명대학교
연구기간	2023.09.01 ~ 2023.11.30

명 세 서

청구범위

청구항 1

폴리오르가노실록산 10~40 중량%;

산화알루미늄 50~80 중량%;

가교제 1~5 중량%; 및

옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%;를 포함하는, 복합소재 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 폴리오르가노실록산은 폴리(메틸하이드록시)실록산 및 비닐기 말단 폴리디메틸실록산을 포함하는, 복합소재 조성물.

청구항 3

제1항에 있어서, 상기 산화알루미늄은 평균입경 1~100㎛ 및 비표면적 0.05~1㎡/g인 복합소재 조성물.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 가교제는 백금-알케닐기 함유 실록산 화합물을 포함하는 복합소재 조성물.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 습윤분산제 0.01~5 중량%를 더 포함하는 복합소재 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서, 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는,

그래핀 옥사이드 분산액, 알코올 및 옥타데실아민을 혼합하여 제1 조성물을 제조하는 단계;

상기 제1 조성물을 90~100℃에서 환류 및 여과하여 여과물을 제조하는 단계;

상기 여과물을 알코올에 분산하고 원심분리하여 분리물을 제조하는 단계; 및

상기 분리물을 건조하는 단계;를 포함하여 제조되는, 복합소재 조성물.

청구항 7

폴리오르가노실록산 10~40 중량%, 산화알루미늄 50~80 중량%, 가교제 1~5 중량%, 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%를 포함하는 복합소재 조성물을 이용하여 중간성형체를 제조하는 단계; 및

상기 중간성형체를 경화시키는 단계;를 포함하는 성형체 제조방법.

청구항 8

제7항에 있어서, 상기 경화는 80~120℃에서 실시되는 성형체 제조방법.

청구항 9

제7항의 성형체 제조방법에 의해 제조된 성형체.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 실리콘 및 고분산 그래핀 옥사이드를 이용한 복합소재 조성물 및 이를 이용한 성형체 제조방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0003] 최근 기술 발전으로 고용량 및 고성능을 갖는 이차전지가 개발되고 있다. 이에 따라, 이차전지의 운전시 발생하는 열을 효율적으로 방열하기 위한 기술 개발이 요구되고 있다.

[0004] 이러한 이차전지의 방열에 대응하기 위해, 열전도성의 충전제를 적용한 실리콘 조성물이 제안되고 있다. 이러한 실리콘 조성물은 실록산 화합물, 필러 및 그래핀 옥사이드를 이용하여 제조되어 이차전지의 방열이 요구되는 부위에 직접 도포되어 코팅층을 형성하거나, 시트와 같은 성형체로 성형되어 적용되었다.

[0005] 그러나, 실리콘 조성물에 포함되는 그래핀 옥사이드는, 분산성이 낮아 실록산 화합물 또는 실리콘 엘라스토머 성분과 혼합이 잘 되지 않는 문제가 있으며, 혼합성 및 분산성 저하로 인해 방열 효율성이 저하되는 문제가 있어 이를 개선하기 위한 연구가 필요한 실정이다.

[0006] 본 발명과 관련한 배경기술은 대한민국 공개특허공보 제2013-0134446호(2013.12.10. 공개, 발명의 명칭: 관능기화 그래핀 및 고분자-관능기화 그래핀 복합체와 그 제조방법)에 개시되어 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명의 하나의 목적은 분산성 및 혼합성이 우수하며 실리콘과, 산화알루미늄 및 그래핀 옥사이드 성분 등의 미분산을 방지하는 효과가 우수한 복합소재 조성물을 제공하는 것이다.

[0009] 본 발명의 다른 목적은 열전도성, 방열 특성 및 기계적 물성이 우수한 복합소재 조성물을 제공하는 것이다.

[0010] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 복합소재 조성물을 이용한 성형체 제조방법을 제공하는 것이다.

[0011] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 성형체 제조방법에 의해 제조된 성형체를 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0013] 본 발명의 하나의 관점은 복합소재 조성물에 관한 것이다. 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물은 폴리오르가노실록산 10~40 중량%; 산화알루미늄 50~80 중량%; 가교제 1~5 중량%; 및 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%;를 포함한다.

[0014] 한 구체예에서 상기 폴리오르가노실록산은 폴리(메틸하이드록시)실록산 및 비닐기 말단 폴리디메틸실록산을 포함할 수 있다,

[0015] 한 구체예에서 상기 산화알루미늄은 평균입경 1~100㎛ 및 비표면적 0.05~1m^2/g 일 수 있다.

[0016] 한 구체예에서 상기 가교제는 백금-알케닐기 함유 실록산 화합물을 포함할 수 있다.

[0017] 한 구체예에서 상기 조성물은 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 습윤분산제 0.01~5 중량%를 더 포함할 수 있다.

[0018] 한 구체예에서 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는, 그래핀 옥사이드 분산액, 알코올 및 옥타데실아민을 혼합하여 제1 조성물을 제조하는 단계; 상기 제1 조성물을 90~100℃에서 환류 및 여과하여 여과물을 제조하는 단계; 상기 여과물을 알코올에 분산하고 원심분리하여 분리물을 제조하는 단계; 및 상기 분리물을 건조하는 단계;를 포함하여 제조될 수 있다.

[0019] 본 발명의 다른 관점은 상기 복합소재 조성물을 이용한 성형체 제조방법에 관한 것이다. 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물 제조방법은 폴리오르가노실록산 10~40 중량%, 산화알루미늄 50~80 중량%, 가교제 1~5 중량%, 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%를 포함하는 복합소재 조성물을 이용하여 중간성형체를 제조하는 단계; 및 상기 중간성형체를 경화시키는 단계;를 포함한다.

[0020] 한 구체예에서 상기 경화는 80~120℃에서 실시될 수 있다.

[0021] 본 발명의 또 다른 관점은 상기 성형체 제조방법에 의해 제조된 성형체에 관한 것이다.

발명의 효과

[0023] 본 발명에 따른 복합소재 조성물은 분산성 및 혼합성이 우수하며, 실리콘(또는 실록산)과, 산화알루미늄 및 그래핀 옥사이드 성분 등의 미분산을 방지하는 효과가 우수하고, 열전도성, 방열 특성 및 기계적 물성이 우수할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0025] 도 1은 실시예에 사용된 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드를 나타낸 주사전자현미경(SEM) 사진이다.

도 2는 비교예 5의 그래핀 옥사이드의 FT-IR 스펙트럼 분석결과이다.

도 3은 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 FT-IR 스펙트럼 분석결과이다.

도 4(a)는 비교예 5의 그래핀 옥사이드의 수분산성을 나타낸 것이며, 도 4(b)는 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 수분산성을 나타낸 사진이다.

도 5(a)는 실시예 1 조성물의 분산성을 나타낸 것이며, 도 5(b)는 비교예 5 조성물의 분산성을 나타낸 사진이다.

도 6(a)는 비교예 5 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 수접촉각 측정결과이며, 도 6(b)는 실시예 1 그래핀 옥사이드의 수접촉각 측정결과를 나타낸 사진이다.

도 7(a)는 산화알루미늄 만을 적용한 성형체 사진이며, 도 7(b)는 비교예 5의 성형체 사진이고, 도 7(c)는 실시예 1의 성형체 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0026] 본 발명을 설명함에 있어서 관련된 공지기술 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명은 생략할 것이다.

[0027] 그리고 후술되는 용어들은 본 발명에서의 기능을 고려하여 정의된 용어들로서 이는 사용자, 운용자의 의도 또는 관례 등에 따라 달라질 수 있으므로 그 정의는 본 발명을 설명하는 본 명세서 전반에 걸친 내용을 토대로 내려져야 할 것이다.

[0029] **복합소재 조성물**

[0030] 본 발명의 하나의 관점은 복합소재 조성물에 관한 것이다. 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물은 폴리오르가노실록산 10~40 중량%; 산화알루미늄 50~80 중량%; 가교제 1~5 중량%; 및 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%;를 포함한다.

[0031] 이하 상기 복합소재 조성물의 구성 성분에 대하여 보다 상세히 설명하도록 한다.

[0033] (1) 폴리오르가노실록산: 상기 폴리오르가노실록산은 상기 조성물의 가공성과 내열성 및 강성 등의 기계적 물성을 확보하기 위해 포함될 수 있다.

[0034] 한 구체예에서 상기 폴리오르가노실록산은 폴리(메틸하이드록시)실록산 및 비닐기 말단 폴리디메틸실록산을 포함할 수 있다. 상기 폴리오르가노실록산을 포함시 조성물의 혼합성과 분산성이 우수하며, 가교제에 의한 가교반응이 용이하게 발생하며, 내열성 및 기계적 물성이 우수할 수 있다.

[0035] 한 구체예에서 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 실록산(Si-O) 결합을 포함하며, 분자의 측쇄 및 단부 중 하나 이상에 하이드록시기(-OH 또는 실라놀기(Si-O-H))를 포함할 수 있다. 상기 조건에서 성형체가 용이하게 형성될 수 있다. 예를 들면 상기 하이드록시기는 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산의 하나 이상의 단부에 포함될 수 있다.

[0036] 한 구체예에서 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 분자의 측쇄 및 단부 중 하나 이상에 메틸($-CH_3$)기를 포함할 수 있다. 예를 들면 상기 메틸기는 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산의 하나 이상의 측쇄에 포함될 수 있다.

[0037] 한 구체예에서 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 하이드록시기 함량이 1~10 중량%일 수 있다. 상기 조건에서 상기 조성물의 기계적 물성과 방열성 및 내열성이 우수할 수 있다.

[0038] 한 구체예에서 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 수평균분자량(Mn)이 1,000~5,000 g/mol일 수 있다. 상기 범위에서 본 발명의 기계적 성질 및 가공성이 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 수평균분자량(Mn)이 2,000~3,000 g/mol일 수 있다.

[0039] 한 구체예에서 상기 폴리(메틸하이드록시)실록산은 점도(25℃)가 500~10,000 cP일 수 있다. 상기 조건에서 조성물의 혼합성 및 성형성이 우수할 수 있다.

[0040] 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산은 분자의 하나 이상의 단부에 비닐기를 포함할 수 있다.

[0041] 한 구체예에서 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산은 비닐기 함량이 0.01~5 몰%일 수 있다. 상기 범위에서 경화성질과 본 발명의 성형체의 내열성 및 기계적 물성이 우수할 수 있다.

[0042] 한 구체예에서 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산은 중량평균분자량(Mw)이 5,000~100,000 g/mol일 수 있다. 상기 범위에서 기계적 성질 및 가공성이 우수할 수 있다.

[0043] 한 구체예에서 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산은 점도(25℃)가 2,000~10,000 cP일 수 있다. 상기 조건에서 조성물의 혼합성 및 성형성이 우수할 수 있다.

[0044] 한 구체예에서 상기 폴리오르가노실록산은 상기 복합소재 조성물 전체중량에 대하여 10~30 중량% 포함된다. 상기 폴리오르가노실록산을 10 중량% 미만으로 포함시 상기 조성물의 내열성과 기계적 물성이 저하되고, 40 중량%를 초과하여 포함시 상기 조성물의 혼합성, 분산성 및 방열성이 저하될 수 있다. 예를 들면 상기 폴리오르가노실록산은 10~35 중량%, 15~30 중량% 또는 15~25 중량% 포함될 수 있다.

[0045] 한 구체예에서 상기 폴리오르가노실록산은 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산 및 폴리(메틸하이드록시)실록산을 1:0.8~1:3 중량비로 포함할 수 있다. 상기 중량비로 포함시 혼합성 및 분산성이 우수하면서, 내열성, 방열성 및 기계적 물서잉 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 폴리오르가노실록산은 상기 비닐기 말단 폴리디메틸실록산 및 폴리(메틸하이드록시)실록산을 1:1~1:2.5 중량비로 포함할 수 있다.

[0047] (2) 산화알루미늄: 상기 산화알루미늄(Al_2O_3)은 기계적 물성과 열전도성 및 방열특성 확보를 위해 포함될 수 있

다.

[0048] 한 구체예에서 상기 산화알루미늄은 구형, 타원체형, 다면체형 또는 부정형일 수 있다.

[0049] 한 구체예에서 상기 산화알루미늄은 평균입경 1~100㎛ 및 비표면적 0.05~1m^2/g 일 수 있다. 상기 산화알루미늄을 포함시 혼합성 및 분산성이 우수하면서 기계적 물성과 열전도성 및 방열특성이 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 산화알루미늄은 평균입경 20~100㎛ 및 비표면적 0.05~0.5m^2/g 일 수 있다.

[0050] 한 구체예에서 상기 산화알루미늄은 상기 복합소재 조성물 전체중량에 대하여 50~80 중량% 포함된다. 상기 산화알루미늄을 50 중량% 미만으로 포함시 방열성 및 열전도성이 저하되며, 80 중량%를 초과하여 포함시 조성물의 혼합성 및 분산성이 저하되고 기계적 물성이 저하될 수 있다. 예를 들면 상기 산화알루미늄은 55~80 중량%, 60~80 중량%, 65~80 중량% 또는 70~80 중량% 포함될 수 있다.

[0052] (3) 가교제: 상기 가교제는 상기 조성물을 가교하여 성형체를 제조시 기계적 물성을 확보하기 위해 포함될 수 있다.

[0053] 한 구체예에서 상기 가교제는 백금-알케닐기 함유 실록산 화합물을 포함할 수 있다. 상기 조건에서 혼합성과 분산성이 우수하고 조성물이 용이하게 가교되어 성형체가 용이하게 형성될 수 있다. 예를 들면 상기 가교제는 백금-디비닐 테트라메틸디실록산 복합체(platinum complex with divinyltetramethyldisiloxane)를 포함할 수 있다.

[0054] 한 구체예에서 상기 가교제는 상기 복합소재 조성물 전체중량에 대하여 1~5 중량% 포함된다. 상기 가교제를 1 중량% 미만으로 포함시 가교 반응이 용이하게 발생하지 않아 기계적 물성이 저하되고, 5 중량%를 초과하여 포함시 내구성과 기계적 물성이 저하될 수 있다. 예를 들면 상기 가교제는 1~4 중량%, 1~3 중량% 또는 1~2 중량% 포함될 수 있다.

[0056] (4) 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드: 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 열전도성 및 방열특성 확보를 위해 포함될 수 있다. 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는, 표면 소수성으로 개질되어 친수성을 갖는 그래핀 옥사이드 대비 상기 조성물의 폴리오르가노실록산 등의 성분에 대한 분산성과 혼합성이 우수할 수 있다.

[0057] 한 구체예에서 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는, (S1) 그래핀 옥사이드 분산액, 알코올 및 옥타데실아민을 혼합하여 제1 조성물을 제조하는 단계; (S2) 상기 제1 조성물을 90~100℃에서 환류 및 여과하여 여과물을 제조하는 단계; (S3) 상기 여과물을 알코올에 분산하고 원심분리하여 분리물을 제조하는 단계; 및 (S4) 상기 분리물을 건조하는 단계;를 포함하여 제조될 수 있다.

[0058] 상기 그래핀 옥사이드는 통상의 것을 사용할 수 있다. 예를 들면 허머스(Hummers) 법을 통해 그래핀 옥사이드를 제조할 수 있다.

[0059] 한 구체예에서 상기 그래핀 옥사이드는 구형, 편상형, 침상형, 다면체형, 타원체형 또는 부정형일 수 있다.

[0060] 한 구체예에서 상기 그래핀 옥사이드는 평균크기가 30nm 내지 5㎛일 수 있다. 상기 조건에서 혼합성 및 분산성이 우수할 수 있다. 상기 크기는 상기 그래핀 옥사이드의 입경 또는 최대길이를 의미할 수 있다.

[0061] 상기 (S1) 단계에서 그래핀 옥사이드 분산액은 물에 그래핀 옥사이드를 투입하고 초음파 분산하는 단계;를 포함하여 제조될 수 있다.

[0062] 한 구체예에서 상기 그래핀 옥사이드 분산액은 물 100 중량부 및 그래핀 옥사이드 0.05~1 중량부 포함할 수 있다.

[0063] 한 구체예에서 상기 제1 조성물은 상기 물 100 중량부, 그래핀 옥사이드 0.05~1 중량부, 알코올 10~40 중량부 및 옥타데실아민 0.05~1 중량부 포함할 수 있다. 상기 조건에서 혼합성 및 분산성이 우수하며, 옥타데실아민에 의해 그래핀 옥사이드가 용이하게 개질될 수 있다.

[0064] 상기 알코올은 메탄올, 메탄올, 이소프로판올 및 부탄올 중 하나 이상 포함할 수 있다. 예를 들면 에탄올을 포함할 수 있다.

[0065] 예를 들면 상기 제1 조성물은 물 100 중량부, 그래핀 옥사이드 0.1~0.8 중량부, 알코올 15~30 중량부 및 옥타데실아민 0.1~0.8 중량부 포함할 수 있다.

[0066] 상기 (S2) 단계에서 상기 제1 조성물을 90~100℃에서 환류하고, 상기 환류된 제1 조성물을 여과하여 여과물을 제조할 수 있다. 상기 조건에서 상기 여과물의 순도가 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 제1 조성물을 90~100℃에서 500~800rpm으로 1시간 내지 8시간 동안 환류하고, 상기 환류된 제1 조성물을 여과하여 여과물을 제조할 수 있다. 상기 여과물은 파우더 형태일 수 있다. 상기 조건에서 공유결합을 통해 표면 개질이 용이하게 이루어지며 개질된 물질의 탈착이 발생하지 않고 기계적 물성이 우수할 수 있다.

[0067] 상기 (S3) 단계에서 상기 여과물을 알코올에 분산 후, 원심분리하여 분리물을 제조할 수 있다. 상기 조건에서 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드가 용이하게 수득될 수 있다. 예를 들면 상기 여과물을 알코올에 분산하고, 10분 내지 60분 동안 원심분리하여 분리물을 제조할 수 있다. 상기 원심분리는 상기 시간 조건으로 1~10회 실시할 수 있다.

[0068] 상기 알코올은 메탄올, 메탄올, 이소프로판올 및 부탄올 중 하나 이상 포함할 수 있다. 예를 들면 에탄올을 포함할 수 있다.

[0069] 상기 (S4) 단계에서 상기 분리물은 60~95℃에서 건조될 수 있다. 상기 조건으로 건조시 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드가 용이하게 수득될 수 있다. 예를 들면 상기 분리물은 60~95℃에서 1~40 시간 또는 15~30 시간 동안 건조될 수 있다.

[0070] 한 구체예에서 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 상기 복합소재 조성물 전체중량에 대하여 0.1~5 중량% 포함된다. 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드를 0.1 중량% 미만으로 포함시 방열 특성의 확보가 어려우며, 5 중량%를 초과하여 포함시 조성물의 혼합성 및 분산성이 저하되고 기계적 물성이 저하될 수 있다. 예를 들면 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 0.1~4 중량%, 0.1~2 중량% 또는 0.1~1 중량% 포함될 수 있다.

[0072] 본 발명의 한 구체예에서 상기 조성물은 습윤분산제를 더 포함할 수 있다.

[0073] (5) 습윤분산제: 상기 습윤분산제는 상기 조성물의 혼합성 및 분산성을 더욱 향상시키기 위해 포함될 수 있다. 상기 습윤분산제는 통상의 것을 사용할 수 있다.

[0074] 한 구체예에서 상기 조성물은 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 습윤분산제 0.01~5 중량%를 더 포함할 수 있다. 상기 조건에서 조성물의 기계적 물성과 방열 특성이 저하되지 않으면서 조성물의 혼합성 및 분산 안정성이 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 습윤분산제는 0.01~4 중량%, 0.01~3 중량% 또는 0.01~2 중량% 포함될 수 있다.

[0076] (6) 용제: 본 발명의 한 구체예에서 상기 조성물은 용제를 더 포함할 수 있다.

[0077] 한 구체예에서 상기 용제는 물 및 알코올 중 하나 이상 포함할 수 있다. 상기 알코올은 메탄올, 메탄올, 이소프로판올 및 부탄올 중 하나 이상 포함할 수 있다.

[0078] 한 구체예에서 상기 용제는 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 0.1~20 중량% 포함될 수 있다. 상기 범위로 포함시 조성물의 혼합성과 분산성 및 성형성이 우수할 수 있다.

[0080] **복합소재 조성물을 이용한 성형체 제조방법**

[0081] 본 발명의 다른 관점은 상기 복합소재 조성물을 이용한 성형체 제조방법에 관한 것이다. 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물 제조방법은 (S10) 폴리오르가노실록산 10~40 중량%, 산화알루미늄 50~80 중량%, 가교제 1~5 중량%, 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드 0.1~5 중량%를 포함하는 복합소재 조성물을 이용하여 중간성형체를 제조하는 단계; 및 (S20) 상기 중간성형체를 경화시키는 단계;를 포함한다.

[0082] 상기 복합소재 조성물은 전술한 바와 동일하므로 이에 대한 설명은 생략하도록 한다.

[0083] 본 발명의 한 구체예에서 상기 조성물은 습윤분산제를 더 포함할 수 있다. 상기 습윤분산제는 상기 조성물의 혼

합성 및 분산성을 더욱 향상시키기 위해 포함될 수 있다. 상기 습윤분산제는 통상의 것을 사용할 수 있다.

[0084] 한 구체예에서 상기 조성물은 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 습윤분산제 0.01~5 중량%를 더 포함할 수 있다. 상기 조건에서 조성물의 기계적 물성과 방열 특성이 저하되지 않으면서 조성물의 혼합성 및 분산 안정성이 우수할 수 있다. 예를 들면 상기 습윤분산제는 0.01~4 중량%, 0.01~3 중량% 또는 0.01~2 중량% 포함될 수 있다.

[0085] 본 발명의 한 구체예에서 상기 조성물은 용제를 더 포함할 수 있다. 한 구체예에서 상기 용제는 물 및 알코올 중 하나 이상 포함할 수 있다. 상기 알코올은 메탄올, 메탄올, 이소프로판올 및 부탄올 중 하나 이상 포함할 수 있다.

[0086] 한 구체예에서 상기 용제는 상기 복합소재 조성물 전체 중량에 대하여 0.1~20 중량% 포함될 수 있다. 상기 범위로 포함시 조성물의 혼합성과 분산성 및 성형성이 우수할 수 있다.

[0087] 상기 중간성형체는 가압, 사출 및 압출 중 하나 이상의 방법으로 제조될 수 있다.

[0088] 한 구체예에서 상기 복합소재 조성물을 이용하여 30~150℃로 가열하여 중간성형체를 제조할 수 있다. 상기 조건에서 중간성형체가 용이하게 제조될 수 있다.

[0089] 한 구체예에서 상기 경화는 80~120℃에서 실시될 수 있다. 상기 조건으로 경화시 중간성형체가 용이하게 경화될 수 있다.

[0091] **성형체 제조방법에 의해 제조된 성형체**

[0092] 본 발명의 또 다른 관점은 상기 성형체 제조방법에 의해 제조된 성형체에 관한 것이다.

[0094] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 통하여 본 발명의 구성 및 작용을 더욱 상세히 설명하기로 한다. 다만, 이는 본 발명의 바람직한 예시로 제시된 것이며 어떠한 의미로도 이에 의해 본 발명이 제한되는 것으로 해석될 수는 없다. 여기에 기재되지 않은 내용은 이 기술 분야에서 숙련된 자이면 충분히 기술적으로 유추할 수 있는 것이므로 그 설명을 생략하기로 한다.

[0096] **실시예 및 비교예**

[0097] 상기 실시예 및 비교예에 사용된 성분은 하기와 같다.

[0098] (A) 폴리오르가노실록산: (A1) 수평균분자량 2,500g/mol이고, 하나 이상의 측쇄에 메틸기를 가지며, 하나 이상의 단부에 하이드록시기를 갖는 폴리(메틸하이드록시)실록산을 사용하였다. (A2) 점도(25℃) 5000cP 조건의 비닐기 말단 폴리디메틸실록산을 사용하였다.

[0099] (B) 산화알루미늄: 평균입경 1~100㎛ 및 비표면적 0.05~0.5m^2/g인 산화알루미늄(Al_2O_3)을 사용하였다.

[0100] (C) 가교제: 백금-디비닐 테트라메틸디실록산 복합체(platinum complex with divinyltetramethyldisiloxane)를 사용하였다.

[0101] (D1) 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드: 증류수 100 중량부에 그래핀 옥사이드 0.2~0.5 중량부를 초음파 분산하여 그래핀 옥사이드 분산액을 제조하였다. 그 다음에 상기 그래핀 옥사이드 분산액에 상기 물 100 중량부 기준 에탄올 20~25 중량부 및 옥타데실아민 0.1~0.5 중량부를 혼합 및 분산하여 제1 조성물을 제조하였다.

[0102] 상기 제1 조성물을 95℃에서 600rpm으로 4시간 동안 환류한 다음, 여과하여 파우더 형태의 여과물을 제조하였다. 상기 여과물을 에탄올 100mL에 분산하고, 30분 동안 원심분리하는 과정을 4회 반복하여 분리물을 제조하였다. 그 다음에 상기 분리물을 80℃에서 24시간 동안 건조하는 단계;를 포함하여 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드를 제조하였다. 상기 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 주사전자현미경(SEM) 사진을 하기 도 1에 나타내었다.

[0103] (D2) 상기 D1과 동일한 종류의 그래핀 옥사이드를 사용하였다.

[0104] (E) 습윤분산제: BYK사의 BYK-LP X 21879를 사용하였다.

[0106] **실시예 1**

[0107] 하기 표 1의 성분 및 함량을 포함하는 복합소재 조성물을 이용하여 프레스 성형을 이용하여 중간성형체를 제조하고, 상기 중간성형체를 90~105℃에서 경화하여 시트 형상의 성형체를 제조하였다.

[0109] **실시예 2~4 및 비교예 1~5**

[0110] 하기 표 1의 성분 및 함량을 적용한 것을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 성형체를 적용하였다.

표 1

[0111]

구분 (중량%)	실시예				비교예				
	1	2	3	4	1	2	3	4	5
(A1)	14	12	13	15	23	10	14	14	14
(A2)	8	8	7	10	20	5	8	8	8
(B)	76.8	78.8	78.7	73.7	55.8	83.8	71.8	71	76.8
(C)	1	1	1	1	1	1	6	1	1
(D1)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	6	-
(D2)	-	-	-	-	-	-	-	-	0.2
(E)	-	-	0.1	0.1	-	-	-	-	-
합계	100	100	100	100	100	100	100	100	100

[0112] **실험예**

[0113] (1) FT-IR 분석: 상기 실시예 및 비교예 중 대표적으로, 실시예 1에 사용된 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드와, 비교예 5에 사용된 그래핀 옥사이드에 대하여 FT-IR 분석기기를 사용하여 분석한 결과를 하기 도 2 및 도 3에 나타내었다.

[0114] 하기 도 2는 비교예 5의 그래핀 옥사이드의 FT-IR 스펙트럼 분석결과이며, 도 3은 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 FT-IR 스펙트럼 분석결과이다.

[0115] 상기 도 2를 참조하면, 상기 그래핀 옥사이드는, 2924.1cm^{-1} 및 2853.3cm^{-1} 파수에서 지방족 C-H 피크, 1735.1cm^{-1} 및 1617.7cm^{-1}에서 C=O 피크 및 1039.9cm^{-1}에서 C-O 피크를 관찰할 수 있다.

[0116] 반면 상기 도 3을 참조하면, 상기 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는, 2920.4cm^{-1} 및 2849.5cm^{-1}에서 지방족 C-H 피크를 가지며, 1735.1cm^{-1}에서 C=O 피크를 가지며, 1364.2cm^{-1}에서 C-N-C 결합 피크를 가지며, 1215.1cm^{-1}에서 C-N 결합피크를 관찰할 수 있다. 특히 2900cm^{-1} 파수에서 강하게 나오는 진동은 옥타데실아민(ODA)의 C-H bond로 예상될 수 있다.

[0118] (2) 혼합성 및 분산성: 상기 실시예 및 비교예에 대하여, 중간성형체 제조시 상기 조성물의 혼합성 및 분산성을 평가하였다. 상기 조성물의 혼합성 및 분산성 정도는 하기의 4 등급으로 분류하여 평가하여 하기 표 2에 그 결과를 나타내었다(◎: 분산성 매우 양호, ○: 극히 조금 뭉침/분리 발생, △: 약간 뭉침/분리발생, X: 심각한 뭉침/분리 발생).

표 2

[0119]

구분	실시예				비교예				
	1	2	3	4	1	2	3	4	5
분산성 및 혼합성	◎	◎	◎	◎	△	X	△	X	△

[0120] 상기 표 2를 참조하면, 본 발명의 조성물 함량 조건을 벗어난 비교예 1~5는 실시예 1~4에 비해 분산성 및 혼합성이 저하되는 것을 알 수 있었다.

[0121] 한편 도 4(a)는 비교예 5의 그래핀 옥사이드의 수분산성을 나타낸 것이며, 도 4(b)는 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 수분산성을 나타낸 사진이다. 상기 도 4를 참조하면, 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 그래핀 옥사이드가 옥타데실아민을 공유결합 시킴으로써, 소수성으로 개질되어 비교예 5에 비해 수분산성이 저하되는 것을 알 수 있었다.

[0122] 도 5(a)는 실시예 1에서 제조된 복합소재 조성물의 분산성을 나타낸 것이며, 도 5(b)는 비교예 5에서 제조된 복합소재 조성물의 분산성을 나타낸 사진이다. 상기 도 5를 참조하면, 상기 실시예 1은 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드와 폴리오르가노실록산 등 다른 조성물 구성 성분과의 분산성이 우수한 반면, 비교예 5는 그래핀 옥사이드가 일부 미분산되어 분산성이 저하되는 것을 알 수 있었다.

[0124] (3) 수접촉각 측정: 상기 실시예 및 비교예 중 대표적으로, 실시예 1에 사용된 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드와, 비교예 5에 사용된 그래핀 옥사이드에 대하여 수접촉각을 측정하여 그 결과를 하기 도 6에 나타내었다.

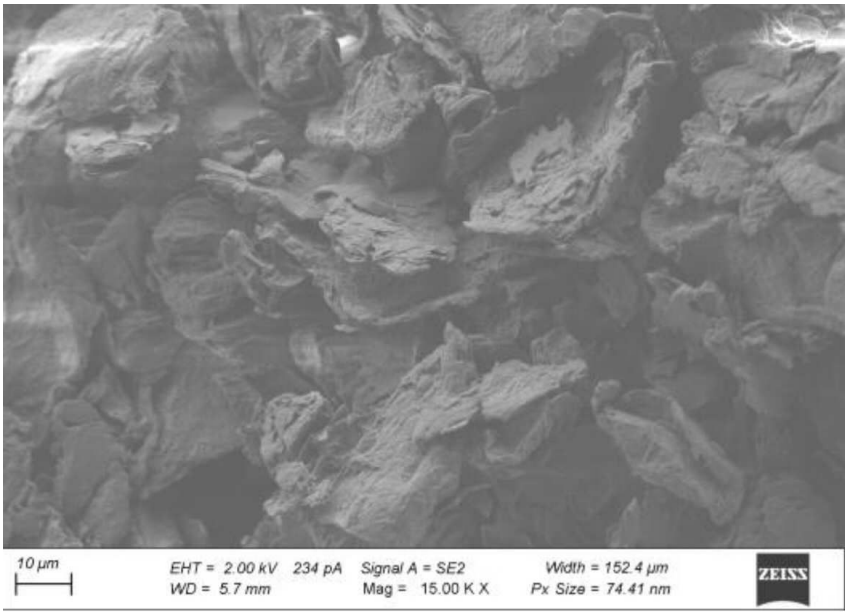
[0125] 하기 도 6(a)는 비교예 5 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드의 수접촉각 측정결과이며, 도 6(b)는 실시예 1 그래핀 옥사이드의 수접촉각 측정결과를 나타낸 사진이다. 상기 도 6의 결과를 참조하면, 본 발명의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 표면이 소수성으로 개질되어 상기 비교예 5의 그래핀 옥사이드 대비 수접촉각이 증가하는 것을 알 수 있었다. 따라서 실시예 1의 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드는 옥타데실아민이 그래핀 옥사이드에 공유결합되어 소수성으로 개질된 것을 알 수 있었다.

[0127] (4) 성형체 분산성 평가: 도 7(a)는 산화알루미늄 만을 적용한 성형체 사진이며, 도 7(b)는 비교예 5의 성형체 사진이고, 도 7(c)는 실시예 1의 성형체 사진이다. 상기 도 7(b)를 참조하면, 비교예 5는 부분적인 검은 색의 스폿(spot)이 관찰되었으며 이는 그래핀 옥사이드가 뭉쳐있는 것을 알 수 있었다. 반면 상기 도 7(c)를 참조하면, 실시예 1은 부분적인 검은 스폿이 없으며 이는 옥타데실아민 개질된 그래핀 옥사이드와 다른 조성물의 구성 성분 사이의 분산성이 우수한 것을 알 수 있었다.

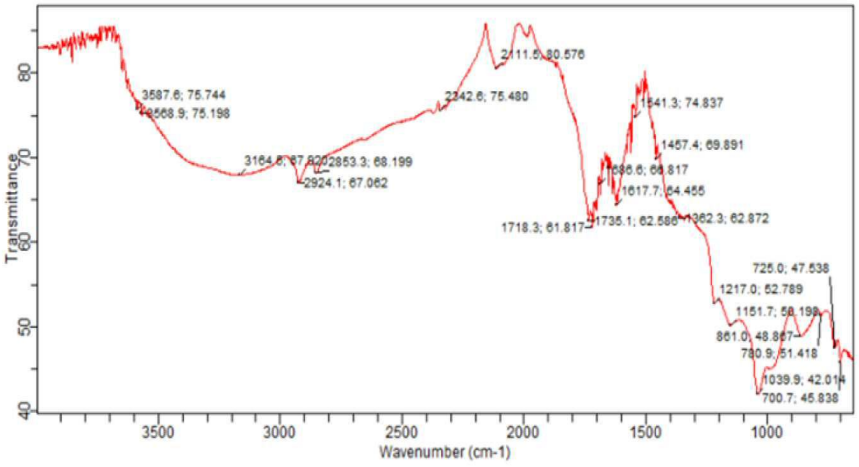
[0129] 이제까지 본 발명에 대하여 실시예들을 중심으로 살펴보았다. 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자는 본 발명이 본 발명의 본질적인 특성에서 벗어나지 않는 범위에서 변형된 형태로 구현될 수 있음을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 개시된 실시예들은 한정적인 관점이 아니라 설명적인 관점에서 고려되어야 한다. 본 발명의 범위는 전술한 설명이 아니라 특허청구범위에 나타나 있으며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 차이점은 본 발명에 포함된 것으로 해석되어야 할 것이다.

도면

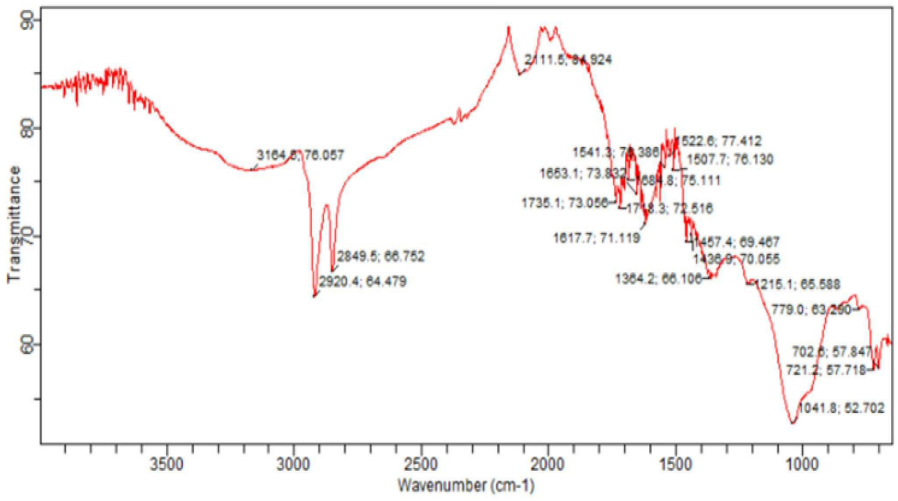
도면1


10 µm
EHT = 2.00 kV 234 pA Signal A = SE2 Width = 152.4 µm
WD = 5.7 mm Mag = 15.00 K X Px Size = 74.41 nm
ZEISS

도면2


Transmittance
Wavenumber (cm-1)
3587.6; 75.744
3568.9; 75.198
3164.6; 67.820
2924.1; 67.062
2853.3; 68.199
2342.6; 75.480
2111.5; 80.576
1718.3; 61.817
1735.1; 62.586
1617.7; 64.455
1541.3; 74.837
1457.4; 69.891
1362.3; 62.872
1217.0; 62.789
1151.7; 58.198
1039.9; 42.014
725.0; 47.538
700.7; 45.838

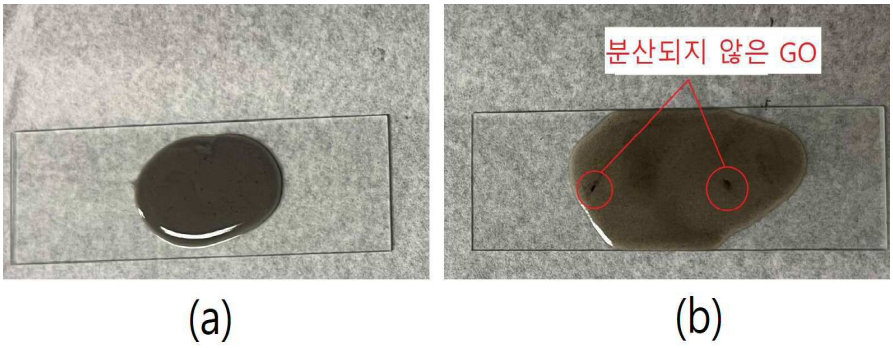
도면3


Transmittance
Wavenumber (cm-1)
3500
3000
2500
2000
1500
1000
90
80
70
60
3164.8; 76.057
2920.4; 64.479
2849.5; 66.752
1735.1; 73.056
1617.7; 71.119
1364.2; 66.106
1215.1; 65.588
779.0; 63.260
721.2; 57.718
1041.8; 52.702

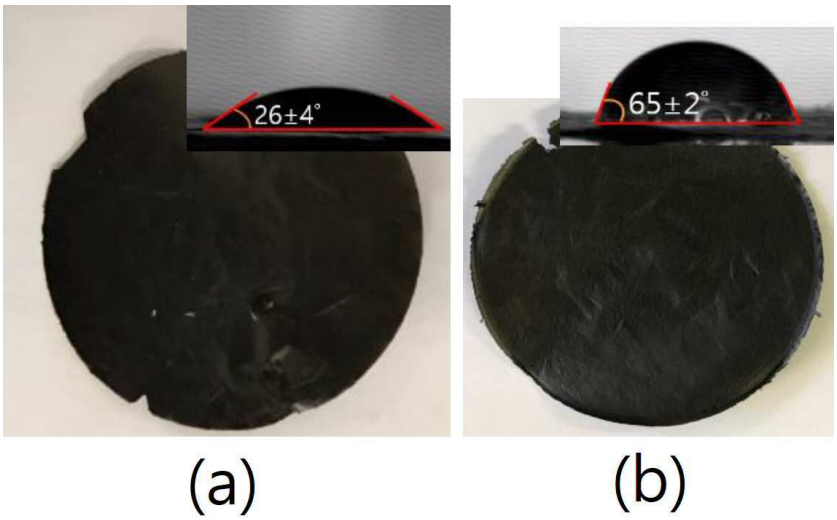
도면4

(a)
(b)

도면5

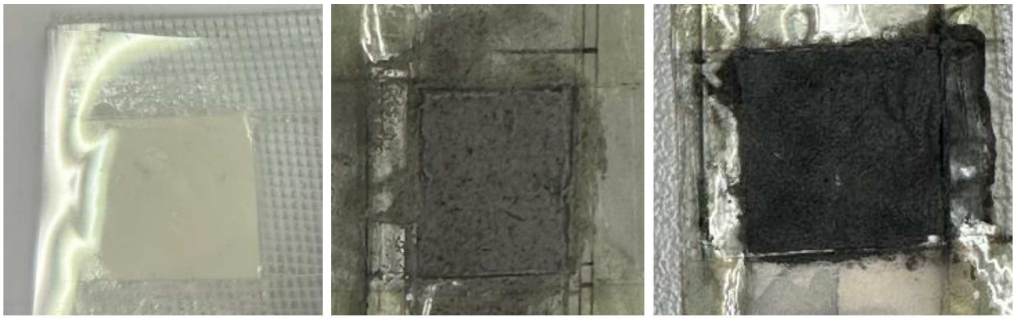

분산되지 않은 GO
(a)
(b)

도면6



(a) (b)

도면7



(a) (b) (c)