

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일

2021년 1월 14일 (14.01.2021)



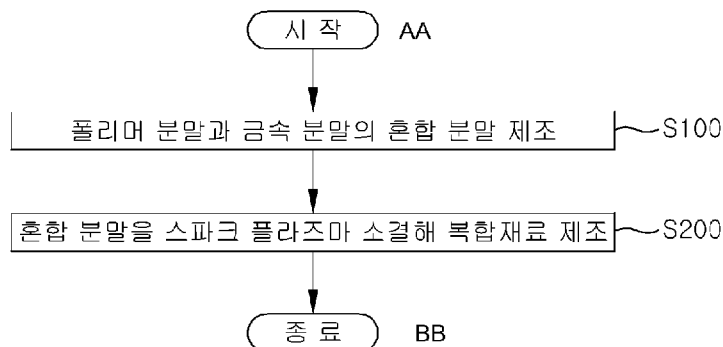
(10) 국제공개번호

WO 2021/006602 A1

- (51) 국제특허분류: C22C 1/05 (2006.01) C08K 3/08 (2006.01)
C08J 3/28 (2006.01) B22F 3/12 (2006.01)
C08J 3/20 (2006.01) B22F 3/105 (2006.01)
C08L 67/02 (2006.01) C22C 1/04 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2020/008862
- (22) 국제출원일: 2020년 7월 7일 (07.07.2020)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보: 10-2019-0082105 2019년 7월 8일 (08.07.2019) KR
- (71) 출원인: 부경대학교 산학협력단 (PUKYONG NATIONAL UNIVERSITY INDUSTRY-UNIVERSITY COOPERATION FOUNDATION) [KR/KR]; 48547 부산시 남구 신선로 365(용당동, 부경대학교), Busan (KR).
- (72) 발명자: 권한상 (KWON, Han Sang); 48275 부산시 수영구 광안해변로 459-5, 402호, Busan (KR).
- (74) 대리인: 김정수 (KIM, Jung Su); 05543 서울시 송파구 올림픽로 360, 5층(방이동), 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, IT, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 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,

(54) Title: METHOD FOR PREPARING METAL-POLYMER COMPOSITE MATERIAL WITH HIGH HEAT DISSIPATION AND ELECTRICAL INSULATION PERFORMANCE AND COMPOSITE MATERIAL PREPARED THEREBY

(54) 발명의 명칭: 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료의 제조 방법 및 이에 의해 제조된 복합재료



S100 ... Prepare mixed powder of polymer powder and metal powder

S200 ... Prepare composite material through spark plasma sintering of mixed powder

AA ... Start

BB ... End

(57) Abstract: The present invention relates to a method for preparing a metal-polymer composite material with high heat dissipation and electrical insulation performance, and a metal-polymer composite material prepared thereby, the method comprising the steps of: (a) preparing mixed powder of polymer powder and metal powder; and (b) preparing a composite material through spark plasma sintering (SPS) of the mixed powder. The metal-polymer composite material prepared according to the present invention has been designed to maximize the advantages and compensate for the disadvantages of the materials, and the prepared metal-polymer composite material can be applied, in a customized form, to parts which require high heat dissipation and electrical insulation performance and a light weight, and is applicable to materials and parts for machinery, automobiles, trains, ships, and aerospace, especially electrical and electronic materials and parts.

[다음 쪽 계속]



FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK,
MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(57) 요약서: 본 발명은 (a) 폴리머 분말과 금속 분말의 혼합 분말을 제조하는 단계; 및 (b) 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS) 하여 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법 및 이에 의해 제조된 금속-폴리머 복합재료에 대한 것으로서, 본 발명에 따라 제조되는 금속-폴리머 복합재료는 각 소재의 장점을 극대화 시키고 단점을 상호할 수 있도록 설계 되었으며 제조된 금속-폴리머 복합재료는 고방열성과 전기절연성 및 경량성이 요구되는 부품군에 맞춤형으로 적용이 가능하며, 기계, 자동차, 열차, 선박, 우주항공, 특히 전기전자 관련 소재부품에 적용이 가능하다.

명세서

발명의 명칭: 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료의 제조 방법 및 이에 의해 제조된 복합재료

기술분야

- [1] 본 발명은 열은 전도할 수 있지만 전기적으로는 절연되는 벌크 복합재료의 제조방법 및 이에 의해 제조된 복합재료에 대한 것이다.

배경기술

- [2] 금속 재료는 기계적 특성이 우수하며 폴리머 소재 대비 매우 높은 열전도성을 지니고 있다.
- [3] 이에 반해, 폴리머 재료는 금속재료 대비 상대적으로 낮은 밀도와 기계적 특성을 나타내며 0에 가까운 열전도성과 전기전도성을 지니고 있다. 그러나, 금속 재료와 비교할 때 상대적으로 높은 내부식성과 유연한 가공 특성으로 인해서 금속 재료와 함께 다양한 산업용 소재로 사용이 되고 있다.
- [4] 한편, 최근 들어 열특성 제어에 대한 이슈가 크게 부각되고 있으며 높은 방열성을 지니면서도 전기적으로는 절연이 될 수 있는 경량 복합소재에 대한 개발이 요구되고 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [5] 본 발명이 해결하고자 하는 기술적 과제는, 폴리머 및 금속 재료 간의 배합 비율을 자유롭게 조정할 수 있고 상대적으로 낮은 온도에서 고밀도를 가지는 뛰어난 방열성 및 전기절연성을 가지는 경량 금속-폴리머 벌크 복합재료를 제조할 수 있으며, 나아가, 복합재료의 형상 및/또는 치수 또한 자유롭게 제어할 수 있는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 폴리머-금속 복합재료의 제조방법을 제공하는 것이다.

과제 해결 수단

- [6] 상기 기술적 과제를 달성하기 위해, 본 발명은 (a) 폴리머 분말과 금속 분말의 혼합 분말을 제조하는 단계; 및 (b) 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)하여 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [7] 또한, 상기 폴리머는 (i) 페놀 수지, 에폭시 수지 및 폴리이미드 수지로부터 선택되는 열경화성 수지 또는 (ii) 올리핀계 수지, 아크릴계 수지, 비닐계 수지, 스티렌계 수지, 불소계 수지 및 섬유소계 수지로부터 선택되는 열가소성 수지인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [8] 또한, 상기 폴리머는 폴리에스테르계 수지인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.

- [9] 또한, 상기 폴리에스테르계 수지는 폴리아릴레이트(Polyarylate, PAR)인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [10] 또한, 상기 금속은 Al, Cu, Ti, Mg, K, Ca, Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Ga, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, W, Cd, Sn, Hf, Ir, Pt 및 Pb로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종의 금속 또는 2종 이상의 금속의 합금인 것을 특징으로 하는 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [11] 또한, 상기 금속은 Al, Mg, 또는 Al-Mg 합금인 것을 특징으로 하는 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [12] 또한, 상기 단계 (b)에서 150 내지 450 °C의 온도 및 5 내지 100 MPa의 압력하에서 1 내지 10 분 동안 방전 플라즈마 소결을 수행하는 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제안한다.
- [13]
- [14] 나아가, 본 발명은 상기 제조방법에 의해 제조된 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료를 제안한다.
- [15] 또한, 1 내지 99 부피%의 금속 및 1 내지 99 부피%의 폴리머를 포함하는 것을 특징으로 하는 금속-폴리머 하이브리드 복합재료를 제안한다.
- [16] 또한, 폴리머와 금속의 부피비가 서로 다른 2개 이상의 층(layer)이 적층된 구조의 시트(sheet) 형상을 가지는 경사기능성 재료(functionally graded material, FGM)인 것을 특징으로 하는 금속-폴리머 복합재료를 제안한다.

발명의 효과

- [17] 본 발명에 따라 제조되는 금속-폴리머 복합재료는 각 소재의 장점을 극대화시키고 단점을 상호할 수 있도록 설계 되었으며 제조된 금속-폴리머 이중 복합재료는 고방열성과 전기절연성 및 경량성이 요구되는 부품군에 맞춤형으로 적용이 가능하며, 기계, 자동차, 열차, 선박, 우주항공, 특히 전기전자 관련 소재부품에 적용이 가능하다.

도면의 간단한 설명

- [18] 도 1은 본 발명에 따른 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법의 공정 흐름도이다.
- [19] 도 2은 본원 실시예에서 금속-폴리머 복합재료 제조를 위해 사용한 금속 또는 폴리머 분말의 FE-SEM 이미지이다.
- [20] 도 3은 본원 실시예에서 금속-폴리머 복합재료 제조를 위해 금속 분말 및 폴리머 분말을 혼합한 후 기계적 밀링 공정을 통해 제조한 금속/폴리머 혼합 분말의 FE-SEM 이미지이다.

[21] 도 4 내지 도 6은 본원 실시예에서 제조된 금속-폴리머 복합재료 소결체의 사진이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[22] 본 발명을 설명함에 있어서 관련된 공지 기능 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명을 생략할 것이다.

[23]

[24] 본 발명의 개념에 따른 실시예는 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있으므로 특정 실시예들을 도면에 예시하고 본 명세서 또는 출원에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명의 개념에 따른 실시 예를 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.

[25]

[26] 본 명세서에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시예를 설명하기 위해 사용된 것으로, 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 명세서에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 실시된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[27]

[28] 이하, 본 발명을 상세히 설명하도록 한다.

[29]

[30] 본 발명은, (a) 폴리머 분말과 금속 분말의 혼합 분말을 제조하는 단계; 및 (b) 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)하여 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법을 제공한다(도 1).

[31]

[32] 상기 단계 (a)에서는, 전동 볼밀링, 교반 볼밀링, 유성 볼밀링 등의 다양한 형태의 볼밀링 공정을 통해 폴리머 분말과 금속 분말을 혼합하여 균질한 혼합 분말을 제조하며, 일례로, 통상의 전동 볼밀링 장치를 이용하는 저에너지 밀링 공정을 100 내지 500 rpm으로 1 내지 20 시간 동안 실시해 폴리머와 금속 재료 간의 혼합 분말을 제조할 수 있다.

[33]

[34] 상기 폴리머 분말은 열가소성 수지 또는 열경화성 수지로 이루어진다.

[35] 상기 열가소성 수지의 예로는 열가소성 수지로는 올리핀계 수지인 폴리에틸렌,

폴리프로필렌, 폴리-4-메틸펜텐-1, 아크릴계 수지인 폴리메타크릴산메틸, 아크릴로니트릴, 비닐계 수지인 폴리염화비닐, 폴리초산비닐, 폴리비닐알코올, 폴리비닐 부티랄, 폴리염화비닐덴, 스티렌계 수지인 폴리스티렌, ABS 수지, 불소 수지인 4불화에틸렌수지, 3불화에틸렌수지, 폴리불화비닐덴, 폴리불화비닐, 섬유소계 수지인 니트로셀룰로즈, 셀룰로즈아세테이트, 에틸셀룰로즈, 프로필렌 셀룰로즈 등을 들 수 있으며, 이외에도 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리아세탈, 폴리카보네이트, 폴리에틸렌부타레이트, 폴리부틸렌부타레이트, 아이오노모수지, 폴리설푼, 폴리에테르설푼, 폴리페닐렌에테르, 폴리페닐렌설파이드, 폴리에테르이미드, 폴리에테르에테르케톤, 방향족 폴리에스테르(에코놀, 폴리아릴레이트) 등이 사용 가능하다.

[36] 또한 상기 열경화성 수지의 예로는 페놀 수지, 에폭시 수지 및 폴리이미드 수지 등을 들 수 있다.

[37]

[38] 폴리머와 복합화되어 금속-폴리머 복합재료를 형성하는데 제공되는 이종 재료인 금속은 Al, Cu, Ti, Mg, K, Ca, Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Ga, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, W, Cd, Sn, Hf, Ir, Pt 및 Pb로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종의 금속 또는 2종 이상의 금속의 합금일 수 있다.

[39]

[40] 본 단계 (a)에서 제조되는 혼합 분말의 조성은 특별히 제한되지 않고 최종적으로 제조되는 복합재료의 용도에 따라 폴리머와 금속 재료 간의 혼합비를 선택할 수 있으며, 바람직하게는, 1 내지 99 부피%의 폴리머 분말 및 1 내지 99 부피%의 금속 분말을 혼합할 수 있다.

[41]

[42] 한편, 상기 단계 (a)에서는, 후술할 단계 (b)에서의 방전 플라즈마 소결에 앞서 상기 혼합 분말로 성형체를 제조하는 단계를 더 포함할 수 있다. 상기 성형체는 분말을 이용한 통상적인 성형체의 형성방법이라면 제한받지 않고 사용할 수 있으며, 일례로, 몰드에 혼합 분말을 공급하여 예비 성형체를 제조하는 방법을 들 수 있다.

[43] 보다 구체적으로, 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering) 장치의 챔버에 구비되는 몰드에 혼합 분말을 충전하는 과정을 통해 예비 성형체를 제조할 수 있다. 상기 몰드는 봉상 또는 판상의 다양한 형상으로 구비될 수 있으며, 후술할 방전 플라즈마 소결 공정에서 불순물로 작용될 수 없도록, 고온에서도 안정한 소재로 이루어진 몰드를 사용할 수 있다.

[44]

[45] 다음으로, 상기 단계 (b)는, 상기 단계 (a)에서 제조한 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)하여 금속-폴리머 복합재료를 제조하는 단계이다.

- [46] 상기 방전 플라즈마 소결은, 압력이 가해지는 조건에서 상기 혼합 분말에 직류 전류를 가해 혼합 분말의 입자 사이로 흐르는 펄스상의 직류 전류에 의해 불꽃방전 현상이 발생되고, 이에 의해 순간적으로 발생하는 방전 플라즈마의 높은 에너지에 의한 열확산 및 전계 확산과 몰드의 전기저항에 의한 발열 및 가해지는 압력과 전기에너지에 의해 혼합 분말이 소결되어 단시간에 폴리머 및 금속 재료를 복합화하여 치밀한 구조의 복합재료를 제조할 수 있으며, 이러한 소결능을 통해 복합재료 입자의 성장을 효과적으로 제어할 수 있고, 균일한 미세구조를 갖는 금속-폴리머 복합재료를 제조할 수 있다.
- [47] 본 발명에서는 상기 방전 플라즈마 소결 공정을 위해, 예를 들어, 상부전극 및 하부전극이 구비되어 전류를 공급해 방전 플라즈마를 발생시켜 혼합 분말을 소결할 수 있는 몰드를 수용하는 공간을 형성하는 챔버, 냉각수를 유통시켜 상기 챔버를 냉각할 수 있는 냉각부, 상기 상부전극 및 하부전극에 전류를 공급하는 전류공급부, 상기 챔버에 온도를 검출할 수 있는 온도감지부, 상기 챔버 내부에 내기를 외부로 배출할 수 있는 펌프, 상기 챔버 내부에 압력을 공급할 수 있는 압력공급부, 상기 온도감지부가 감지하는 온도에 따라 방전 플라즈마 소결 공정의 온도를 제어하는 제어부 및 상기 제어부를 조절할 수 있는 조작부를 구비한 방전 플라즈마 소결장치를 이용하여 방전 플라즈마 소결 공정을 수행할 수 있다.
- [48] 본 단계에서는 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결하기 위해서, 상기 방전 플라즈마 장치에 구비된 펌프를 이용하여 챔버의 내부가 진공 상태가 될 때까지, 배기하여 감압시킴으로써, 챔버 내에 존재하는 가스 상의 불순물을 제거하고, 산화를 방지하도록 구성하여 방전 플라즈마 소결 공정을 수행할 수 있다.
- [49] 또한, 상기 혼합 분말을 100 °C/분의 승온 속도로 소결 온도까지 가열하여 상기 혼합 분말을 선예열한 후, 방전 플라즈마 소결을 수행할 수 있고, 상기와 같은 승온속도로 혼합 분말을 선예열하여, 방전 플라즈마 소결 공정을 통해 혼합 분말의 내부 및 외부에 균일한 온도가 공급됨으로 인해 균일한 구조의 금속-폴리머 복합재료를 형성시킬 수 있다.
- [50] 또한, 상기 방전 플라즈마 소결 공정은 승온 속도를 조절하여 금속-폴리머 복합재료 입자의 성장을 억제할 수 있어 제조되는 복합재료의 크기를 제어할 수 있다.
- [51] 상기한 방전 플라즈마 소결 공정은 바람직하게는, 150 내지 450 °C의 온도 및 5 내지 100 MPa의 압력하에서 1 내지 10 분 동안 수행하도록 구성하여 금속-폴리머의 복합재료를 제조할 수 있다.
- [52] 또한, 본 단계에서는 상기와 같은 금속-폴리머 복합재료를 소결한 후, 상기 복합재료를 냉각하는 단계를 추가로 포함할 수 있으며, 이를 통해 기계적 특성이 우수한 금속-폴리머 복합재료를 수득할 수 있다. 본 단계에서는 일정 압력을 유지하는 조건에서 상기 금속-폴리머 복합재료를 냉각하도록 구성하여 복합재료의 표면 및 내부에 형성되는 보이드 등의 형성을 억제할 수 있다.

발명의 실시를 위한 형태

[53] 이하, 실시예를 들어 본 발명에 대해 보다 상세하게 설명하기로 한다.

[54]

[55] 본 명세서에 따른 실시예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 명세서의 범위가 아래에서 상술하는 실시예들에 한정되는 것으로 해석되지 않는다. 본 명세서의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 명세서를 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.

[56]

[57] <실시예> 금속-폴리머 복합재료의 제조 및 물성 측정

[58] 도 2 및 도 3은 본 실시예에서 금속-폴리머 복합재료 제조를 위해 사용한 원료 분말 및 이들을 혼합해 얻은 혼합 분말에 대한 FE-SEM 이미지이다.

[59]

[60] 본 실시예에서 폴리머로는 폴리아릴레이트(Polyarylate, PAR) 수지를 사용했다(도 2(d)).

[61] 참고로, 폴리아릴레이트 수지는 방향족 선형 폴리에스터 수지를 의미하며, 제반물성이 특수한 플라스틱 엔지니어링 수지로서, 내열성이 높고, 기계적 강도가 뛰어나며 투명하므로 전기 전자 제품의 스위치류, 소켓류, 전자레인저 부품, 릴레이 케이스 및 기판 등에 사용된다. 또한, 기계 분야에서는 시계 내/외장품, 광학 기계부품, 가스차단기 등의 열기기 부품, 또는 하우징이나 자동차 분야의 렌즈류, 전장품 하우징, 계기판 등의 각종 재료 및 포장 재료로서 광범위하게 이용되고 있다. 상기와 같은 폴리아릴레이트 수지는 통상 방향족 디올과 방향족 디카르복실산을 축중합하여 제조된다.

[62]

[63] 또한, 금속 분말로는 알루미늄(Al) (도 2(a)), 마그네슘(Mg) (도 2(b)), 구리(Cu) (도 2(c)), 티타늄(Ti) (도 2(e)), 스테인리스 스틸(SUS) (도 2(f)) 또는 알루미늄-마그네슘 합금(AlSiMg) 분말을 사용했다.

[64]

[65] PAR 분말 및 금속 분말을 아래 표 1 및 표 2에 기재된 조성의 부피비에 따라 볼밀링 장치의 바이알에 장입하고 20 mL의 헵탄(heptane)을 투입한 후, 볼과 혼합 분말의 중량비를 5 : 1로 설정하여 볼을 투입하고, 아래 표 1 및 표 2에 기재된 밀링 조건에 따라 160 또는 100 rpm으로 3시간 동안 저에너지 볼밀링 공정을 수행하여 도 3에 도시한 혼합 분말을 비롯해 다양한 조성의 금속/폴리머 혼합 분말을 제조하였다.

[66]

[67] 상기 밀링 공정을 통해 얻어진 금속/폴리머 혼합 분말을 10 × 10mm의 탄소 몰드에 장입하고, 몰드를 방전 플라즈마 소결 장치의 챔버에 장착하였다. 챔버에 압력을 진공상태가 되도록 조절하고, 상부 전극 및 하부 전극에 전류를 인가하여

아래 표 1 및 표 2에 기재한 바와 같이 300 °C의 온도 및 50 MPa의 압력조건하에서 1분 동안 방전 플라즈마 소결 공정을 수행하여, 금속-폴리머 복합재료 소결체를 제조하였으며, 또한, 금속과 PAR가 순차적으로 적층된 구조의 경사기능성 재료(FGM)의 제조를 위해 금속(Al, Mg 또는 Alsium) 분말을 탄소 몰드에 장입한 후, 상기 금속 분말층 상에 PAR 분말을 적층한 후 300 °C의 온도 및 50 MPa의 압력조건하에서 1분 동안 방전 플라즈마 소결 공정을 수행해 FGM 금속-폴리머 복합재료를 제조하였다(도 4 내지 도 6).

[68]

[69] 상기와 같이 제조된 각 복합재료의 열전도도 및 전전도도 등의 물성은 아래 표 1 및 표 2에 기재하였다.

[70]

[71] [표1]

Compos ition	Density(g/cm ³)	Millingc ondition	Sinterin gconditi on	Melting	Heatcap acity(J/g ·K)	Diffusivi ty(mm ² /s)	Thermal Conduct ivity(W· m ⁻¹ ·K ⁻¹) Exper.	Electrica l conducti vity(Ω)
Pure Al/Pure PAR (FGM)	2.2321	160rpm, 3h,20ml	300°C,5 0MPa,1 min	○(~303 °C부근)	1.287	1.024	~ 70	Al side : ○PAR side : ×
Pure Mg/Pure PAR (FGM)	1.7171	160rpm, 3h,20ml	300°C,5 0MPa,1 min	×	1.399	1.221	~ 50	Mg side : ○PAR side : ×
AlSium/ Pure PAR (FGM)	1.9730	160rpm, 3h,20ml	300°C,5 0MPa,1 min	×	1.277	1.520	~ 90	Alsium side : ○PAR side : ×
AlSium/ AlSium- 50vol.% PAR(FG M)	2.0480	160rpm, 3h,20ml	300°C,5 0MPa,1 min	×	1.182	10.488	~ 110	Alsium side : ○Alsiu m-50vol . %PAR side:×

[72] [표2]

Composition	Density(g/cm ³)	Milling condition	Sintering condition	Melting	Heat capacity(J/g·K)	Diffusivity(mm ² /s)	Thermal Conductivity(W·m ⁻¹ ·K ⁻¹) Exper.	Electrical conductivity(Ω)
AlSiium-50vol.% PAR	2.0099	160rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	0.986	~ 50.46	~ 100	×
AlSiium-60vol.% PAR	1.9610	160rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	0.955	~ 37.37	~ 70	×
AlSiium-70vol.% PAR	1.9231	160rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	1.035	~25.12	~ 50	×
Al-50vol.% PAR	2.2911	160rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	1.015	~ 29.24	~ 68	×
Mg-50vol.% PAR	1.7054	160rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	1.044	~ 26.95	~ 48	×
Cu-50vol.% PAR	6.0267	100rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	0.486	~ 40.96	~ 120	○
Ti-50vol.% PAR	3.3684	100rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	0.628	~ 5.4	~ 11	○
SUS-50vol.% PAR	4.700	100rpm, 3h, 20ml	300°C, 50MPa, 1 min	×	0.850	~ 2.5	~ 10	○

[73]

[74]

이상, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명의 실시예를 설명하였지만, 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자는 본 발명이 그 기술적 사상이나 필수적인 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 실시될 수 있다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 이상에서 기술한 실시예에는 모든 면에서

예시적인 것이며 한정적이 아닌 것으로 이해해야만 한다.

산업상 이용가능성

- [75] 본 발명에 따라 제조되는 금속-폴리머 복합재료는 고방열성과 전기절연성 및 경량성이 요구되는 부품군에 맞춤형으로 적용이 가능하며, 예를 들어, 기계, 자동차, 열차, 선박, 우주항공, 특히 전기전자 관련 소재부품에 적용이 가능하다.

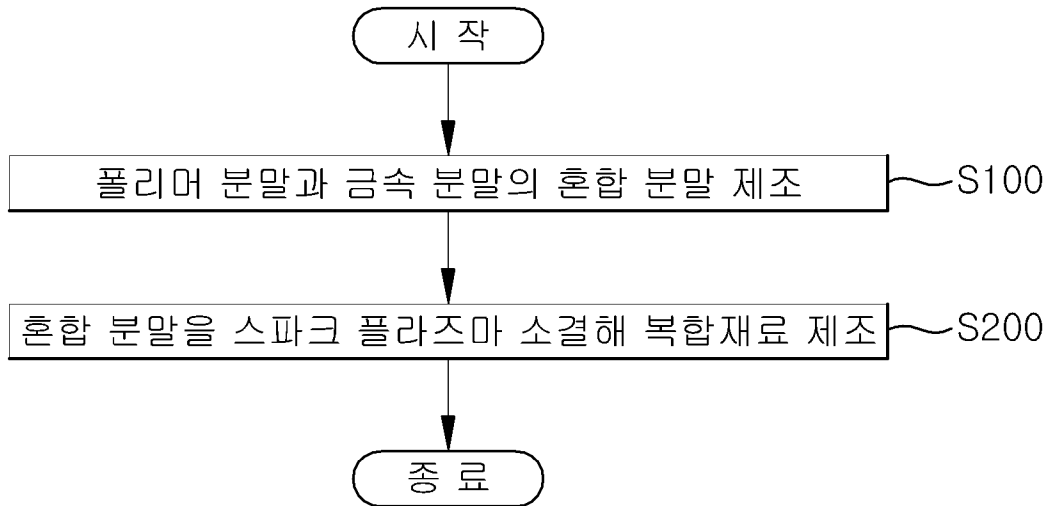
청구범위

- [청구항 1] (a) 폴리머 분말과 금속 분말의 혼합 분말을 제조하는 단계; 및
(b) 상기 혼합 분말을 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)하여 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 2] 제1항에 있어서,
상기 폴리머는 (i) 아크릴계 수지, 올리핀계 수지, 비닐계 수지, 스티렌계 수지, 불소계 수지 및 섬유소계 수지로부터 선택되는 열가소성 수지 또는 (ii) 페놀 수지, 에폭시 수지 및 폴리이미드 수지로부터 선택되는 열경화성 수지인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 3] 제1항에 있어서,
상기 폴리머는 폴리에스테르계 수지인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 4] 제3항에 있어서,
상기 폴리에스테르계 수지는 폴리아릴레이트(Polyarylate, PAR)인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 5] 제1항에 있어서,
상기 금속은 Al, Cu, Ti, Mg, K, Ca, Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Ga, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, W, Cd, Sn, Hf, Ir, Pt 및 Pb로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종의 금속 또는 2종 이상의 금속의 합금인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 6] 제1항에 있어서,
상기 금속은 Al, Mg, 또는 Al-Mg 합금인 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 7] 제1항에 있어서,
상기 단계 (b)에서 150 내지 450 °C의 온도 및 5 내지 100 MPa의 압력 하에서 1 내지 10 분 동안 방전 플라즈마 소결을 수행하는 것을 특징으로 하는 높은 방열성 및 전기절연성을 가지는 금속-폴리머 복합재료 제조방법.
- [청구항 8] 제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 기재된 제조방법에 의해 제조된 금속-폴리머 복합재료.
- [청구항 9] 제8항에 있어서,
1 내지 99 부피%의 금속 및 1 내지 99 부피%의 폴리머를 포함하는

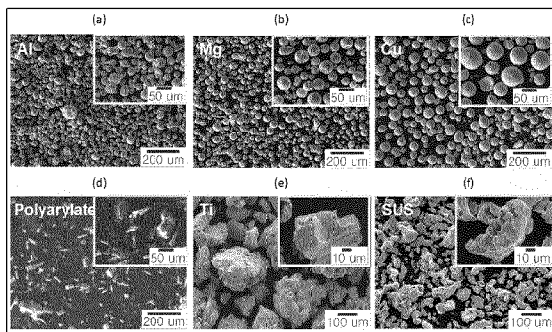
금속-폴리머 하이브리드 복합재료인 것을 특징으로 하는 금속-폴리머 복합재료.

- [청구항 10] 제8항에 있어서,
폴리머와 금속의 부피비가 서로 다른 2개 이상의 층(layer)이 적층된 구조의 시트(sheet) 형상을 가지는 경사기능성 재료(functionally graded material, FGM)인 것을 특징으로 하는 금속-폴리머 복합재료.

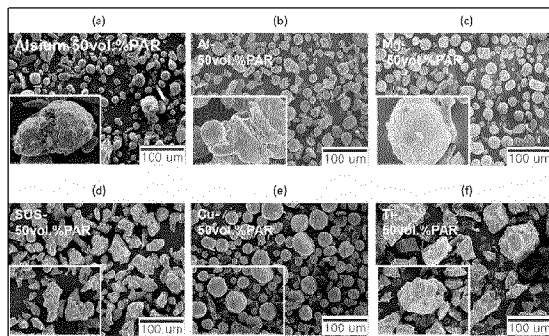
[도1]



[도2]



[도3]



[도4]

Composition	Top view	Bottom view	Side view
Pure Al/ Pure PAR			
Pure Mg/ Pure PAR			
AlSiium/ Pure PAR			

[도5]

Composition	Top view	Bottom view	Side view
AlSiium/ AlSiium-50vol.%PAR (FGM)			
AlSiium-50vol.%PAR			
AlSiium-60vol.%PAR			
AlSiium-70vol.%PAR			

[도6]

Composition	Top view	Bottom view	Side view
Al-50vol.%PAR			
Mg-50vol.%PAR			
Cu-50vol.%PAR			
Ti-50vol.%PAR			
SUS-50vol.%PAR			

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2020/008862

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C22C 1/05(2006.01)i; **C08J 3/28**(2006.01)i; **C08J 3/20**(2006.01)i; **C08L 67/02**(2006.01)i; **C08K 3/08**(2006.01)i;
B22F 3/12(2006.01)i; **B22F 3/105**(2006.01)i; **C22C 1/04**(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C22C 1/05; B22F 1/00; B29C 67/04; B32B 15/08; B32B 15/09; C08J 5/24; C08K 3/08; C08K 9/04; H01B 3/00; C08J 3/28;
C08J 3/20; C08L 67/02; B22F 3/12; B22F 3/105; C22C 1/04

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

Korean utility models and applications for utility models: IPC as above
Japanese utility models and applications for utility models: IPC as above

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

eKOMPASS (KIPO internal) & keywords: 폴리머(polymer), 금속(metal), 복합재료(composite material), 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2012-086529 A (KYUSHU INSTITUTE OF TECHNOLOGY et al.) 10 May 2012. See paragraphs [0017]-[0022] and [0034]-[0035] and claims 9-10.	1-2,5-10
Y		3-4
Y	JP 58-206638 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 01 December 1983. See page 2.	3-4
X	JP 09-131828 A (KANEKAFUCHI CHEM IND., CO., LTD.) 20 May 1997. See paragraphs [0020]-[0022], [0033]-[0035] and [0042] and figure 6.	1-2,5-10
Y		3-4



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
“D” document cited by the applicant in the international application
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

05 October 2020

Date of mailing of the international search report

06 October 2020

Name and mailing address of the ISA/KR

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

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2020/008862**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 10-2011-0018870 A (TOHOKU UNIVERSITY et al.) 24 February 2011. See paragraphs [0050]-[0061].	1-10
A	US 2016-0107419 A1 (FIH (HONG KONG) LIMITED) 21 April 2016. See claims 1 and 12.	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2020/008862

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
JP	2012-086529	A	10 May 2012	JP	5652603 B2	14 January 2015
JP	58-206638	A	01 December 1983	None		
JP	09-131828	A	20 May 1997	None		
KR	10-2011-0018870	A	24 February 2011	CN	101981631 A	23 February 2011
				JP	2009-249673 A	29 October 2009
				JP	5574395 B2	20 August 2014
				US	2011-0017501 A1	27 January 2011
				WO	2009-123018 A1	08 October 2009
US	2016-0107419	A1	21 April 2016	CN	105500823 A	20 April 2016
				JP	2016-078429 A	16 May 2016
				TW	201617220 A	16 May 2016

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C22C 1/05(2006.01)i, C08J 3/28(2006.01)i, C08J 3/20(2006.01)i, C08L 67/02(2006.01)i, C08K 3/08(2006.01)i, B22F 3/12(2006.01)i, B22F 3/105(2006.01)i, C22C 1/04(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C22C 1/05; B22F 1/00; B29C 67/04; B32B 15/08; B32B 15/09; C08J 5/24; C08K 3/08; C08K 9/04; H01B 3/00; C08J 3/28; C08J 3/20; C08L 67/02; B22F 3/12; B22F 3/105; C22C 1/04

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

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

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

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 폴리머(polymer), 금속(metal), 복합재료(composite material), 방전 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 2012-086529 A (KYUSHU INSTITUTE OF TECHNOLOGY 등) 2012.05.10 단락 [0017]-[0022], [0034]-[0035] 및 청구항 9-10	1-2,5-10
Y		3-4
Y	JP 58-206638 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 1983.12.01 페이지 2	3-4
X	JP 09-131828 A (KANEGAFUCHI CHEM IND., CO., LTD.) 1997.05.20 단락 [0020]-[0022], [0033]-[0035], [0042] 및 청구항 6	1-2,5-10
Y		3-4
A	KR 10-2011-0018870 A (고쿠리츠 다이가쿠 호진 도호쿠 다이가쿠 등) 2011.02.24 단락 [0050]-[0061]	1-10
A	US 2016-0107419 A1 (FIH (HONG KONG) LIMITED) 2016.04.21 청구항 1, 12	1-10

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

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

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

“D” 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후 “X”에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

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

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

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

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

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일

2020년 10월 05일 (05.10.2020)

국제조사보고서 발송일

2020년 10월 06일 (06.10.2020)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



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

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

방승훈

전화번호 +82-42-481-5560



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 2012-086529 A	2012/05/10	JP 5652603 B2	2015/01/14
JP 58-206638 A	1983/12/01	없음	
JP 09-131828 A	1997/05/20	없음	
KR 10-2011-0018870 A	2011/02/24	CN 101981631 A JP 2009-249673 A JP 5574395 B2 US 2011-0017501 A1 WO 2009-123018 A1	2011/02/23 2009/10/29 2014/08/20 2011/01/27 2009/10/08
US 2016-0107419 A1	2016/04/21	CN 105500823 A JP 2016-078429 A TW 201617220 A	2016/04/20 2016/05/16 2016/05/16