

**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 공개특허공보(A)**

(11) 공개번호 10-2020-0109593

(43) 공개일자 2020년09월23일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

*B29C 70/34* (2006.01) *B29C 70/06* (2006.01)*B29K 101/12* (2006.01) *B29K 307/04* (2006.01)

(52) CPC특허분류

*B29C 70/34* (2013.01)*B29C 70/06* (2013.01)

(21) 출원번호 10-2019-0028851

(22) 출원일자 2019년03월13일

심사청구일자 2019년03월13일

(71) 출원인

경상대학교산학협력단

경상남도 진주시 진주대로 501 (가좌동)

(72) 발명자

박종만

경상남도 진주시 진주대로 805 주악현대아파트  
118-704

박하승

경상남도 함양군 함양읍 영림서길 28-12

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

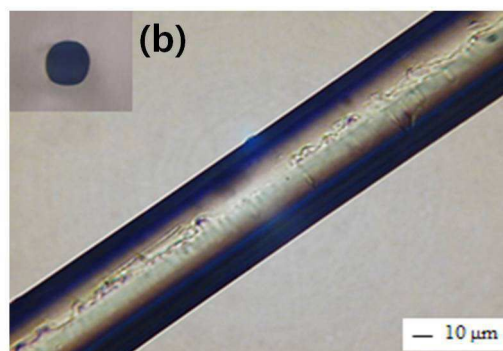
특허법인 플러스

전체 청구항 수 : 총 7 항

(54) 발명의 명칭 열가소성 수지 매트릭스 섬유, 이를 포함하는 고탄침성 탄소섬유 강화 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법

**(57) 요약**

본 발명은 열가소성 수지 매트릭스 섬유, 이를 포함하는 고탄침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 섬유 형태의 열가소성 수지 매트릭스 섬유를 제공함으로써 탄소섬유 내 함침성 및 계면 결합력이 향상된 고탄침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법을 제공하는 것이다.

**대표도** - 도1

(52) CPC특허분류

**C08J 5/041** (2013.01)

**C08K 7/06** (2013.01)

**B29K 2101/12** (2013.01)

**B29K 2307/04** (2013.01)

**D10B 2101/12** (2013.01)

(72) 발명자

**백영민**

경상남도 창원시 마산회원구 내서읍 삼계1길 48 삼  
계한우리아파트 103동 403호

**신평수**

경상남도 진주시 진주대로 501 경상대학교 404동  
522호

**김중현**

경상남도 창원시 의창구 소계로 101, 310호

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 1345276513

부처명 교육부

과제관리(전문)기관명 한국연구재단

연구사업명 개인기초연구

연구과제명 [EZBARO]고분산 나노입자를 이용한 에너지저장용 내구성 및 다기능성 코팅의 계면  
특성 연구(3차년도)

기 여 율 1/1

과제수행기관명 경상대학교

연구기간 2018.03.01 ~ 2019.02.28

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

열가소성 수지 및 탄소계 나노입자를 포함하는 매트릭스 섬유를 제조하는 단계;

상기 매트릭스 섬유를 탄소섬유 층 일면 또는 양면에 적층하여 적층체를 형성하는 단계;

상기 적층체를 가열 및 가압성형하여 상기 매트릭스 섬유를 상기 탄소섬유 사이로 함침시켜 결합하는 단계;

를 포함하는 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 열가소성 수지는 폴리에틸렌 수지, 폴리프로필렌 수지, 폴리염화비닐 수지, 폴리염화비닐리덴 수지, 아크릴로니트릴 부타디엔 스티렌 공중합체 수지, 폴리스티렌 수지, 아크릴로니트릴 스티렌 공중합체 수지, 메타크릴 수지, 폴리비닐 알코올 수지, 에틸렌비닐아세테이트 공중합체 수지, 셀룰로오스계 수지, 폴리아미드 수지, 폴리아세탈 수지, 폴리카보네이트 수지, 변성 폴리페닐렌에테르 수지, 열가소성 폴리에스테르 수지, 폴리테트라플루오로에틸렌 수지, 불소계 수지, 폴리페닐렌 설파이드 수지, 폴리설폰 수지, 폴리에테르이미드 수지, 폴리에테르 설폰 수지, 폴리에테르 케톤 수지, 액정 폴리에스테르 수지, 폴리아미드이미드 수지, 폴리이미드 수지 및 폴리벤즈이미다졸로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것인 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 3

제 1항에 있어서,

상기 탄소계 나노입자는 그래핀 나노 리본, 탄소나노튜브, 그래핀, 그래파이트, 그래핀 플레이크, 산화 그래핀 플레이크, 흑연 플레이크, 팽창 흑연 플레이크, 산화 흑연 플레이크, 플러렌, 카본블랙으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것인 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 4

제 1항에 있어서,

상기 탄소계 나노입자는 상기 매트릭스 섬유 전체 중량에 대해서, 0.1 내지 10 wt%로 포함되는 것인 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 5

제 1항에 있어서,

상기 매트릭스 섬유의 두께는 1 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것인 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 6

제 1항에 있어서,

상기 가열 및 가압성형 온도는 100 내지 300  $^{\circ}\text{C}$ 인 것인 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법.

#### 청구항 7

제 1항 내지 제 6항에서 선택되는 어느 한 항의 제조방법으로 제조되며,

고함침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 100중량부에 대해서, 매트릭스 섬유가 20 내지 60 중량부이고, 탄소섬유가 40 내지 80 중량부인 것인 고함침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료.

## 발명의 설명

### 기술 분야

[0001] 본 발명은 열가소성 수지 매트릭스 섬유, 이를 포함하는 고함침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 섬유 형태의 열가소성 수지 매트릭스 섬유를 제공함으로써 탄소섬유 내 함침성 및 계면 결합력이 향상된 고함침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법을 제공하는 것이다.

### 배경 기술

[0002] 전세계적으로 환경오염 및 지구온난화에 따른 이산화탄소 배출 규제에 대한 규제가 강화되었으며, 에너지 절감 및 이산화탄소의 배출 감소가 요구되는 가운데 자동차, 항공 우주, 철도, 선박, 수송기계 등의 광범위한 분야에서 경량화를 위한 대체 소재의 기술개발이 활발히 진행되고 있다.

[0003] 이러한 대체 소재를 위해, 경량 재료인 고분자를 매트릭스로 하고 유리섬유, 탄소섬유 및 아라미드 섬유 등을 강화재로 사용하는 섬유강화 고분자 복합재료의 개발이 중요해지고 있다.

[0004] 이 중 탄소섬유 강화 고분자 복합재료는 알루미늄 대비 약 30%, 스틸 대비 약 50% 정도의 우수한 경량화 효과를 가지고 있으며, 기존에 사용되었던 금속재료의 무게 대비 강도 및 강성, 경량성, 내충격성, 내화학성, 내부식성, 부품 일체화로 인한 제작의 용이성 등이 뛰어나 첨단기술 산업에 적용을 위한 소재로 각광 받고 있어 사용량이 급격하게 증가하고 있는 추세이다.

[0005] 열경화성 수지를 이용한 섬유 강화 고분자 복합재료는 고강도, 고강성의 특성을 갖는 장점이 있었으나, 그러나 경화반응으로 인한 복합재료 성형 사이클 시간이 오래 소요되며, 내충격성 등을 개선해야 할 필요성이 있었다.

[0006] 상기와 같은 문제점을 해결하기 위해서, 열가소성 수지를 이용한 섬유 강화 고분자 복합재료에 대한 연구가 집중적으로 진행되었다. 열가소성 수지의 경우 재활용이 가능하며, 인성이 높고, 경화반응이 요구되지 않아 복합재료 성형 사이클 시간이 매우 짧아 시간을 단축할 수 있어 생산성이 매우 우수하다는 장점이 있다.

[0007] 그러나, 열가소성 수지의 경우 탄소섬유와 낮은 계면 결합력을 가지고 있으며, 높은 용융점도를 가지고 있어 탄소섬유 번들 사이로 함침성이 매우 낮은 특성으로 인해 복합재료 제조 시 내부 기공(Void)을 형성할 수 있어, 기계적 물성 저하를 야기하여 실용화가 매우 제한적이었으며, 내열성이 부족하다는 단점이 있었다. 이러한 단점은 탄소섬유와 열가소성 수지 간의 낮은 계면전단강도(Interfacial shear strength)에 큰 영향을 미치며, 탄소섬유 강화 열가소성 복합재료(Carbon fiber reinforced thermoplastic composite, CFRTP)의 기계적 물성을 매우 저하시키는 요인이 되고 있다.

[0008] 이러한 문제를 해결하여 적용분야를 확대하기 위해, 열가소성 수지의 함침성을 개선하기 위한 연구가 널리 진행되고 있으며, 필름 형태의 열가소성 수지를 탄소섬유와 적층하여 고온 고압조건에서 탄소섬유에 함침시켜 탄소섬유 강화 열가소성 수지 복합재료를 제조하는 방법이 시도되었으나, 이러한 방법은 열가소성 수지의 용융점도가 매우 높아 낮은 함침성을 나타내었으며, 열가소성 수지의 열화가 발생하여 물성을 저하시킬 수 있다는 단점이 있었다.

[0009] 또한, 탄소섬유의 표면 자유에너지를 높여 열가소성 수지와 계면 결합력을 높이기 위해 화학적 물리적 표면처리 방법이 적용되었으나, 이 중 화학적 처리방법으로 산처리, 플라즈마 처리 등은 탄소섬유 표면을 식각시키는 단점으로 섬유 자체의 물성을 저하시키는 문제가 있었으며, 물리적인 표면처리 방법은 효과가 상대적으로 매우 낮아 한계가 있었다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0010] (특허문헌 0001) 대한민국 공개특허 제10-1992-0009892(1992.06.25)

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0011] 본 발명의 목적은 탄소섬유 내 함침성이 개선된 매트릭스 섬유 및 이의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0012] 또한, 본 발명의 다른 목적은 탄소계 나노입자가 첨가되어 기계적 물성이 향상된 매트릭스 섬유 및 이의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0013] 또한, 본 발명의 다른 목적은 함침성이 우수한 섬유 형태의 매트릭스 섬유 및 이를 적용한 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이들의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0014] 또한, 본 발명의 다른 목적은 기계적 물성이 현저히 향상된 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법을 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

[0015] 본 발명에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법은 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자를 포함하는 매트릭스 섬유를 제조하는 단계; 상기 매트릭스 섬유를 탄소섬유 층 일면 또는 양면에 적층하여 적층체를 형성하는 단계 및 상기 적층체를 가열 및 가압성형하여 상기 매트릭스 섬유를 상기 탄소섬유 사이로 함침시켜 결합하는 단계 등을 포함한다.

[0016] 본 발명의 일 예에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 있어, 상기 열가소성 수지는 폴리에틸렌 수지, 폴리프로필렌 수지, 폴리염화비닐 수지, 폴리염화비닐리덴 수지, 아크릴로니트릴 부타디엔 스티렌 공중합체, 폴리스티렌 수지, 아크릴로니트릴 스티렌 공중합체 수지, 메타크릴 수지, 폴리비닐 알코올 수지, 에틸렌 비닐 아세테이트 공중합체 수지, 셀룰로오스계 수지, 폴리아미드 수지, 폴리아세탈 수지, 폴리카보네이트 수지, 변성 폴리페닐렌에테르 수지, 열가소성 폴리에스테르 수지, 폴리테트라플루오로에틸렌 수지, 불소계 수지, 폴리페닐렌 설파이드 수지, 폴리설폰 수지, 폴리에테르이미드 수지, 폴리에테르설폰 수지, 폴리에테르 케톤 수지, 액정 폴리에스테르 수지, 폴리아미드이미드 수지, 폴리이미드 수지 및 폴리벤즈이미다졸 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것을 포함할 수 있다.

[0017] 본 발명의 일 예에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 있어, 상기 탄소계 나노입자는 그래핀 나노 리본, 탄소나노튜브, 그래핀, 그래파이트, 그래핀 플레이크, 산화 그래핀 플레이크, 흑연 플레이크, 팽창 흑연 플레이크, 산화 흑연 플레이크, 풀러렌 및 카본블랙 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것을 포함할 수 있다.

[0018] 본 발명의 일 예에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 있어, 상기 탄소계 나노입자는 상기 매트릭스 섬유 전체 중량에 대해서, 0.1 내지 10 wt%로 포함될 수 있다.

[0019] 본 발명의 일 예에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 있어, 상기 매트릭스 섬유의 두께는 1 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것을 포함할 수 있다.

[0020] 본 발명의 일 예에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법에 있어, 상기 가열 및 가압성형 온도는 100 내지 300  $^{\circ}\text{C}$ 인 것을 포함할 수 있다.

[0021] 본 발명에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료는 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법으로 제조되며, 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 100중량부에 대해서, 상기 매트릭스 섬유가 20 내지 60 중량부이고, 상기 탄소섬유가 40 내지 80 중량부인 것을 포함할 수 있다.

### 발명의 효과

[0022] 본 발명의 일 예에 따른 매트릭스 섬유는 및 이의 제조방법은 탄소섬유 내 함침성이 매우 우수하다는 장점이 있다.

[0023] 본 발명의 일 예에 따른 매트릭스 섬유 및 이의 제조방법은 탄소계 나노입자가 첨가되어 기계적 물성이 우수하

다는 장점이 있다.

[0024] 본 발명의 일 예에 따른 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법은 함침성이 우수한 섬유 형태의 매트릭스 섬유를 매트릭스로 사용함에 따라 탄소섬유 내 우수한 함침성을 가진다는 장점이 있다.

[0025] 본 발명의 일 예에 따른 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 및 이의 제조방법은 매트릭스 섬유와 탄소섬유 간의 결합력이 현저히 향상되어 기계적 물성이 우수하다는 장점이 있다.

### 도면의 간단한 설명

[0026] 도 1의 a)는 본 발명의 일 실시예에 따른 매트릭스 섬유를 나타내는 것이며, 도 1의 b)는 본 발명의 일 실시예에 따른 매트릭스 섬유를 주사전자현미경(SEM)으로 관찰한 사진을 나타낸 것이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0027] 이하 첨부된 도면들을 포함한 구체예 또는 실시예를 통해 본 발명을 더욱 상세히 설명한다. 다만 하기 구체예 또는 실시예는 본 발명을 상세히 설명하기 위한 하나의 참조일 뿐 본 발명이 이에 한정되는 것은 아니며, 여러 형태로 구현될 수 있다.

[0028] 또한 달리 정의되지 않는 한, 모든 기술적 용어 및 과학적 용어는 본 발명이 속하는 당업자 중 하나에 의해 일반적으로 이해되는 의미와 동일한 의미를 갖는다. 본 발명에서 설명에 사용되는 용어는 단지 특정 구체예를 효과적으로 기술하기 위함이고 본 발명을 제한하는 것으로 의도되지 않는다.

[0029] 또한 명세서 및 첨부된 특허청구범위에서 사용되는 단수 형태는 문맥에서 특별한 지시가 없는 한 복수 형태도 포함하는 것으로 의도할 수 있다.

[0031] 본 발명의 발명자들은 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 제조 시 열가소성 수지의 높은 점도로 인해 탄소섬유 내 함침성이 매우 낮은 문제를 해결하기 위해, 열가소성 수지를 섬유 형태의 매트릭스 섬유를 제조하였으며, 이를 적용할 경우 매트릭스 섬유의 유동거리가 짧아짐으로 인해 종래에 사용되던 필름형 열가소성 수지에 비해 탄소섬유 내 함침성이 상당히 향상된 복합재료를 제공할 수 있음을 발견하여 본 발명을 완성하였다.

[0033] 이하, 본 발명에 대해서 구체적으로 설명한다.

[0034] 본 발명은 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법을 제공하며, 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자를 포함하는 매트릭스 섬유를 제조하는 단계; 상기 매트릭스 섬유를 탄소섬유 층 일면 또는 양면에 적층하여 적층체를 형성하는 단계; 상기 적층체를 가열 및 가압하여 상기 매트릭스 섬유를 상기 탄소섬유 사이로 함침시켜 결합하는 단계 등을 포함한다.

[0035] 상기 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법은 상기 결합하는 단계 이후 냉각하는 단계를 더 포함할 수 있다.

[0036] 먼저, 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자를 포함하는 매트릭스 섬유를 제조하는 단계에 대해 설명한다.

[0037] 상기 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자는 혼합된 후 상기 매트릭스 섬유를 제조하기 위한 원료로 사용될 수 있으며, 특별히 제한되는 것은 아니지만, 상기 탄소계 나노입자는 상기 원료 전체 중량에 대해 0.1 내지 10 wt%, 구체적으로는 1 내지 7 wt%, 보다 구체적으로는 1 내지 5 wt%로 포함될 수 있다.

[0038] 상기 열가소성 수지는 특별히 제한되는 것은 아니지만 분말 및 펠렛 등의 형태로 존재할 수 있으며, 폴리에틸렌 수지, 폴리프로필렌 수지, 폴리염화비닐 수지, 폴리염화비닐렌 수지, 아크릴로니트릴 부타디엔 스티렌 코폴리머 수지, 폴리스티렌 수지, 아크릴로니트릴스티렌 수지, 메타크릴 수지, 폴리비닐 알코올 수지, 에틸렌 비닐 아세테이트 공중합체 수지, 셀룰로오스계 수지, 폴리아미드 수지, 폴리아세탈 수지, 폴리카보네이트 수지, 변성 폴리페닐렌에테르 수지, 열가소성 폴리에스테르 수지, 폴리테트라플루오로에틸렌 수지, 불소계 수지, 폴리페닐렌 설파이드 수지, 폴리설폰 수지, 폴리에테르이미드 수지, 폴리에테르설폰 수지, 폴리에테르 케톤 수지, 액정 폴리에스테르 수지, 폴리아미드이미드 수지, 폴리아미드 수지 및 폴리벤즈이미다졸 수지 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것을 포함할 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.

- [0039] 상기 탄소계 나노입자는 특별히 제한되는 것은 아니지만, 구체적인 일 예로 그래핀 나노 리본, 탄소나노튜브, 그래핀, 그래파이트, 그래핀 플레이크, 산화 그래핀 플레이크, 흑연 플레이크, 팽창 흑연 플레이크, 산화 흑연 플레이크, 플러렌 및 카본블랙 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 혼합물로 이루어진 것을 포함할 수 있다.
- [0040] 상기 탄소나노튜브는 기계적, 전기적 특성이 매우 우수하여 상기 열가소성 수지 내 분산되어 열가소성 수지의 물성을 향상시킬 수 있으며, 구체적으로는 상기 매트릭스 섬유의 기계적, 전기적 특성을 향상시킬 수 있다.
- [0041] 상기 탄소나노튜브는 튜브의 벽을 이루는 그래핀의 시트의 개수에 따라 단일벽 탄소나노튜브(single-walled carbon nanotube), 다중벽 탄소나노튜브 (multi-walled carbon nanotube) 및 여러 개의 탄소나노튜브가 다발(bundled)의 형태 등으로 존재할 수도 있으며, 이들 모두가 상기 열가소성 수지 및 상기 매트릭스 섬유의 기계적, 전기적 물성을 향상 시키기 위해 특별히 제한되지 않고 사용될 수 있다. 일 예로, 상기 다중벽 탄소나노 튜브는 5 nm 내지 100 nm의 두께를 가질 수 있으나, 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0042] 구체적인 일 양태로, 상기 탄소나노튜브는 다중벽 탄소나노튜브를 사용 하는 것이 본 발명의 매트릭스 섬유를 제조하기 위해 보다 효과적일 수 있으나, 이는 일 예일 뿐 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0043] 구체적인 일 양태로, 상기 탄소계 나노입자는 상기 매트릭스 섬유 전체 중량에 대하여 0.1 내지 10 wt%로 포함될 수 있으며, 구체적으로는 1 내지 7 wt%, 보다 구체적으로는 1 내지 5 wt%로 포함되는 것일 수 있으나, 상기 범위로 포함됨에 따라 상기 매트릭스 섬유 내 분산성이 우수할 수 있으나 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0044] 상기 매트릭스 섬유를 제조하는 단계는 상기 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자 등을 포함하는 혼합물을 이용하여 용융 방사, 습식방사, 건식방사, 전기방사, 복합방사, 겔방사, 상분리방사 및 이형방사 등으로 이루어진 군에서 선택되는 하나 또는 두 가지 이상의 방법으로 제조하는 것일 수 있으나, 특별히 이에 제한되는 것은 아니며 공지된 다양한 방법으로 제조할 수 있다.
- [0045] 상기 용융방사는 특별히 제한되는 것은 아니지만, 압출기를 이용해 수행되는 것일 수 있으며 이는 구체적으로 예시하기 위한 일 예일 뿐 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0046] 구체적인 일 양태로, 상기 매트릭스 섬유는 상기 용융방사를 통해 제조되는 것일 수 있으며, 상기 열가소성 수지 및 탄소계 나노입자를 혼합한 원료를 압출기에 투입하는 단계; 상기 원료를 용융 및 혼련시켜 상기 열가소성 수지 내 상기 탄소계 나노입자를 균일하게 분산시키는 단계; 상기 압출기의 다이로부터 상기 매트릭스 섬유를 얻어 냉각시키는 단계 등을 포함함으로써 제조되는 것일 수 있다.
- [0047] 상기 원료를 제조하기 위해, 상기 탄소계 나노입자는 상기 원료 전체 중량에 대해 0.1 내지 10 wt%로 포함되는 것일 수 있으며, 구체적으로는 1 내지 7 wt%, 보다 구체적으로는 1 내지 5 wt%로 포함되는 것일 수 있으며, 상기 범위로 포함됨에 따라 상기 열가소성 수지와 균일하게 혼합될 수 있으며, 상기 열가소성 수지 내 우수한 분산성을 가질 수 있어 바람직하나, 특별히 이에 제한 되는 것은 아니다.
- [0048] 상기 용융 및 혼련은 50 내지 300 °C의 범위의 온도에서 수행되는 것일 수 있으며, 구체적으로는 70 내지 300 °C, 보다 구체적으로는 100 내지 300 °C에서 수행되는 것일 수 있으나, 상기 열가소성 수지를 용융시킬 수 있는 온도라면 특별히 제한되지 않으며, 상기 온도 범위에서 상기 용융온도를 다양하게 변경하면서 용융시키는 것일 수 있다.
- [0049] 상기 원료를 용융 및 혼련시켜 상기 열가소성 수지 내 상기 탄소계 나노입자를 균일하게 분산시킬 수 있으며, 구체적인 일 예로 상기 용융 및 혼련은 상기 원료를 투입한 후 압출기의 내부 실린더에서 다이까지 분류된 네 개의 온도 구간을 통과하면서 진행되는 것일 수 있으며, 상기 네 개의 온도 구간은 각각 다른 온도범위로 설정된 것일 수 있다.
- [0050] 상기 네 개의 온도 구간은 상기 열가소성 수지를 용융시킬 수 있는 온도라면 특별히 제한되지 않으나, 구체적으로 예를 들자면, 상기 네 개의 온도구간은 각각 독립적으로 50 내지 300 °C의 온도일 수 있으며, 구체적으로는 70 내지 300 °C, 보다 구체적으로는 100 내지 300 °C로 설정된 것일 수 있으며, 상기 상기 매트릭스 수지를 제조하기 위해 각 구간의 온도를 다양하게 변경하면서 상기 원료를 용융시킬 수 있으며, 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0051] 구체적인 일 양태로, 상기 네 개의 온도 구간은 각각 순서대로 100 내지 150 °C, 150 내지 200 °C, 230 내지 270 °C, 250 내지 300 °C일 수 있으며, 상기 원료를 상기 네 개의 온도 구간에 통과시키면서 용융 및 혼련하는

것일 수 있으나, 이는 일 예일 뿐 이에 제한되는 것은 아니다.

- [0052] 상기 혼련을 위한 속도는 50 내지 500 rpm일 수 있으며, 구체적으로는 100 내지 500 rpm일 수 있으나, 상기 원료를 균일하게 혼합하고 상기 탄소계 나노입자를 상기 열가소성 수지 균일하게 분산시킬 수 있는 속도라면 특별히 이에 제한되지 않는다.
- [0053] 상기 원료를 용융 및 혼련시킨 후 상기 압출기의 다이로부터 상기 매트릭스 섬유를 얻어 냉각시키는 단계를 통해 상기 매트릭스 섬유를 얻는 것일 수 있다.
- [0054] 상기 냉각은 상기 다이로부터 압출된 상기 매트릭스 섬유를 공기 중에서 냉각시키거나, 물이 채워진 욕조에 담귀 수행되는 것일 수 있으며, 특별히 제한되는 것은 아니며, 이외에 공지된 모든 방법을 사용할 수 있다.
- [0055] 상기 냉각시키는 단계를 통해 얻어진 상기 매트릭스 섬유는 와인더 상에 수집되는 것일 수 있으며, 구체적인 예로, 상기 냉각단계를 통해 얻어진 상기 매트릭스 섬유의 두께는 1 내지 100  $\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 구체적으로는 20 내지 90  $\mu\text{m}$ , 보다 구체적으로는 30 내지 80  $\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 상기 범위의 두께를 가짐으로써 본 발명의 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조 시 보다 우수한 함침성을 가질 수 있어 바람직하나, 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0056] 상기 압출기는 특별히 제한되는 것은 아니지만, 일 예로 단축 압출기 및 2축 내지 5축을 가지는 다축 압출기 등을 사용할 수 있으나, 이외에도 통상적으로 사용되는 Elastic melt 압출기, Hydro-dynamic 압출기, 램식 연속압출기 및 물식 압출기 등 의 압출기라면 특별히 제한되지 않고 사용될 수 있다.
- [0057] 일 양태로, 본 발명에서 사용되는 압출기는 2축 압출기일 수 있으며, 상기 2축 압출기를 사용함에 따라 상기 원료를 보다 균일하게 혼합 및 혼련시킬 수 있으며, 상기 열가소성 수지 내 상기 탄소계 나노입자의 분산성이 보다 우수할 수 있으나, 이는 일 예일 뿐 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0058] 구체적인 일 예로, 본 발명의 매트릭스 섬유는 상기 폴리카보네이트 수지 및 상기 다중벽 탄소나노튜브 입자를 포함하는 원료로 제조되는 것일 수 있으며, 상기 원료의 전체 중량에 대하여 상기 다중벽 탄소나노튜브 입자를 0.1 내지 10 wt%로 포함되는 것일 수 있으며, 바람직하게는 1 내지 7 wt%, 보다 바람직하게는 1 내지 5 wt%로 포함되는 것일 수 있으며, 상기 범위로 포함됨에 따라 상기 폴리카보네이트 수지와 균일하게 혼합될 수 있으며, 상기 폴리카보네이트 수지 내 우수한 분산성을 가질 수 있어 바람직하나, 이는 일 예시일 뿐 특별히 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0059] 상기 매트릭스 섬유는 본 발명의 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 제조 시 용융되어 상기 탄소섬유 사이에서 우수한 함침성을 가질 수 있으며, 상기 탄소섬유와 우수한 계면 결합력을 형성할 수 있다.
- [0060] 다음으로, 상기 매트릭스 섬유를 탄소섬유 층 일면 또는 양면에 적층하여 적층체를 형성하는 단계에 대해서 설명한다.
- [0061] 상기 매트릭스 섬유는 탄소섬유 층 일면 또는 양면에 적층되어 적층체를 형성할 수 있으며, 이를 한번 이상 반복하여 여러 개의 매트릭스 섬유 층 및 상기 탄소섬유 층이 교대로 반복되는 적층체를 형성할 수 도 있으나, 이는 특별히 제한되는 것은 아니며 본 발명의 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료를 제조하기 위해 자유롭게 변경이 가능하다.
- [0062] 본 발명에 사용될 수 있는 탄소섬유는 PAN계 탄소섬유 및 피치계 탄소섬유를 포함하며, 특히 제한되는 것은 아니다.
- [0063] 본 발명에서 상기 탄소섬유 층은 다양한 형태를 가지는 탄소섬유로 이루어진 층을 말하는 것이며, 상기 탄소섬유는 토우, 부직포 및 직물 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 둘 이상의 형태로 이루어진 것을 포함할 수 있으며, 이외에 탄소섬유로 만들 수 있는 형태라면 특별히 이에 제한되지 않는다.
- [0064] 본 발명의 일 양태에 따라, 상기 탄소섬유는 상기 열가소성 수지가 함침되어 있지 않거나, 또는 함침되어 있는 것일 수도 있으나, 이는 일 예시일 뿐, 본 발명의 목적에 따라 자유롭게 변경할 수 있다.
- [0065] 다음으로 상기 적층체를 가열 및 가압성형하여 상기 매트릭스 섬유를 상기 탄소섬유 사이로 함침시켜 결합하는 단계를 설명한다.
- [0066] 상기 결합하는 단계는 상기 매트릭스 섬유를 용융시켜 상기 탄소섬유 사이로 함침시키는 것일 수 있으며, 이를

통해 상기 탄소섬유 사이를 결합시켜 함침성 및 기계적 강도가 우수한 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료를 제조할 수 있다.

- [0067] 본 발명의 일 양태에 있어, 상기 결합하는 단계 이후 냉각하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0068] 상기 가열 및 가압성형은 복합재료를 제조할 수 있는 공지된 방법이라면 특별히 제한되지 않으며, 다양한 방법을 적용할 수 있다. 구체적으로 예를 들면, 압출성형, 사출성형, 인발 (pultrusion) 성형, 압축(compression) 성형, 레진 트랜스퍼 몰딩(Resin Transfer Molding, RTM) 성형, 핸드 레이업(Hand Lay-up) 성형, 오토 클레이브(Autoclave) 성형 및 필라멘트 와인딩(Filament Winding) 성형 등 다양한 방법이 가능하다.
- [0069] 구체적인 일 양태로, 상기 적층체는 상기 압축 성형 방법을 적용하고, 가열 및 가압성형하여 본 발명의 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료를 제조할 수 있으며, 가열시편압축성형기(핫프레스)를 사용하는 것일 수 있으나, 특별히 이에 제한되지 않는다.
- [0070] 상기 가열 및 가압성형 온도는 상기 매트릭스 섬유를 용융시킬 수 있는 온도라면 특별히 제한되지 않으나, 100 내지 300 ℃인 것일 수 있으며, 구체적으로는 150 내지 300 ℃, 보다 구체적으로는 200 내지 300 ℃일 수 있으며, 상기 범위에서 상기 매트릭스 섬유가 용융되어 상기 탄소섬유 사이에 우수한 함침성을 가질 수 있어 바람직하다.
- [0071] 상기 가압은 특별히 제한되는 것은 아니나, 예를 들면 0.1 내지 20 MPa의 압력을 가하는 것일 수 있으며 1 내지 10MPa의 압력 조건으로 1 내지 30분 동안 가하는 것일 수 있다.
- [0072] 상기 가열 및 가압성형 공정을 통해 함침성 및 기계적 물성이 우수한 본 발명의 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료가 제조될 수 있다.
- [0073] 구체적인 일 예로, 상기 가열 및 가압성형 공정을 통해 상기 매트릭스 섬유가 용융될 수 있는데, 상기 매트릭스 섬유의 경우 섬유 형상을 가짐에 따라 상기 탄소섬유와 접촉 면적이 넓고, 접촉 하지 않는 부분 또한 접촉 거리가 매우 가까워 용융 시 유동거리가 매우 짧으므로, 상기 탄소섬유 사이에서 매우 우수한 함침성을 가질 수 있다.
- [0074] 보다 구체적으로, 상기 적층체를 상기 가열 및 가압성형하여 상기 매트릭스 섬유를 상기 탄소섬유 사이로 함침시켜 결합하는 것일 수 있으며, 이로써 본 발명의 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료가 제조되는 것일 수 있다.
- [0075] 일 양태로, 본 발명의 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법으로 복합재료를 제조할 경우, 상기 매트릭스 섬유는 상기 탄소섬유 내 우수한 함침성을 가지며, 이로 인해 탄소섬유와 계면 결합력이 우수하여 기계적 물성이 상당히 향상되는 효과를 가질 수 있다.
- [0076] 본 발명에 따른 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료는 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조방법으로 제조되며, 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 100중량부에 대해서, 상기 매트릭스 섬유가 20 내지 60 중량부이고, 상기 탄소섬유가 40 내지 80 중량부인 것을 포함할 수 있다.
- [0077] 구체적인 일 양태로, 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 100중량부에 대해서, 상기 매트릭스 섬유가 20 내지 60 중량부일 수 있으며, 구체적으로는 40 내지 60 중량부, 보다 구체적으로는 40 내지 60 중량부인 것을 포함할 수 있다.
- [0078] 구체적인 일 양태로, 상기 고타입성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료 100중량부에 대해서, 상기 탄소섬유가 40 내지 80 중량부인 것을 포함할 수 있으며, 구체적으로는 40 내지 70 중량부, 보다 구체적으로는 40 내지 60 중량부인 것을 포함할 수 있다.
- [0079] 이하 실시예 및 비교예를 바탕으로 본 발명을 더욱 상세히 설명한다. 다만 하기 실시예 및 비교예는 본 발명을 더욱 상세히 설명하기 위한 하나의 예시일 뿐, 본 발명이 하기 실시예 및 비교예에 의해 제한되는 것은 아니다.

[0081] [실시예 1]

[0082] 1. 매트릭스 섬유의 제조

- [0083] 평균직경 20 nm, 평균길이 25  $\mu\text{m}$ , 비표면적은  $250\text{m}^2/\text{g}$ 인 다중벽 탄소나노튜브(, CM-95 grade, 일진나노텍)를 준비하였으며, 폴리카보네이트 펠렛(Iupilon E2000, Mitsubishi Engineering-Plastics Corporation)을 80℃의 진공오븐에서 건조하였다. 건조된 다중벽 탄소나노튜브와 폴리카보네이트 펠렛의 전체 중량에 대하여, 다중벽 탄소나노튜브를 5 wt%, 폴리카보네이트 펠렛을 95 wt%를 드라이 믹싱한 후, 이축 압출기(Ba-11, Bautech) 호퍼에 주입하여 압출하였다.
- [0084] 다이는 L/D(길이/지름)이 20이며, 직경이 0.001 mm인 홀을 60개 가지는 원형 다이노즐을 사용하였으며, 스크류 속도는 300 rpm이며, 압출온도는 압출기 내부 실린더에서 다이까지 네 개의 온도 구간인 130 °C, 170 °C, 250 °C, 285 °C로 설정하였다.
- [0085] 상기 온도 조건으로 용융 및 혼련하여 폴리카보네이트와 다중벽 탄소나노튜브를 분산시킨 후 다이속으로 통과시켜 얻어진 섬유를 물속에서 냉각하였다. 권취 속도는 0.1 m/min로 섬유의 직경이 60  $\mu\text{m}$ 가 되도록 와인더 상에 수집하였으며, 100 °C의 진공오븐에서 30분 동안 건조하여 최종적으로 다중벽 탄소나노튜브가 분산된 매트릭스 섬유를 제조하였다.
- [0087] 2. 고풍침성 탄소섬유 보강 열가소성 플라스틱 복합재료의 제조
- [0088] 탄소섬유 직물(12K Carbon Fiber, 탄소섬유 중량 200 g/m<sup>2</sup>, Plain)을 각각 10 x 10 mm 정사각형 크기로 재단하여 준비하였으며, 상기 제조된 매트릭스 섬유(직경 60  $\mu\text{m}$ )의 길이를 10 mm로 재단하여 준비하였다. 이때, 재단된 탄소섬유 직물 내 탄소섬유의 중량은 10 mg 이었다.
- [0089] 상기 재단된 탄소섬유 직물 층 일 면에 면적을 전부 덮을 수 있도록 재단된 매트릭스 섬유를 흘뿌린 후 핫프레스(Hot press)를 이용하여 270 °C에서 10분 동안 10 MPa의 압력을 가한 후 상온으로 냉각시켜 1 cm 두께의 복합재료 시편을 제조하였다.
- [0090] 상기 제조된 복합재료에서 매트릭스 섬유가 함침되지 않은 부분을 나이프로 긁어낸 후, 상기 매트릭스 섬유가 탄소섬유 직물에 완전히 침투하여 일체화된 부분만을 추출하여 450 °C 퍼니스(Furnace)에서 넣고 매트릭스 섬유만을 태우는 과정을 거친 후, 남은 탄소섬유의 중량을 계산한 결과, 탄소섬유의 중량은 5.9 mg이었다. 이러한 결과를 통해 실시예 1로 제조된 복합재료의 경우 비교예 1에 비해 함침된 탄소섬유의 중량이 40.4 % 높은 것으로 확인되었으며, 이는 섬유 형태인 매트릭스 섬유의 경우 탄소섬유와 접촉하는 면적이 넓고 용융 시 유동거리가 짧음에 따라 탄소섬유 사이에 균일하게 함침되어 얻어진 결과임을 알 수 있다.
- [0092] [비교예 1]
- [0093] 실시예 1과 동일한 다중벽 탄소나노튜브가 분산된 폴리카보네이트 펠렛을 준비하였으며, 다중벽 탄소나노튜브와 폴리카보네이트 펠렛의 전체 중량에 대하여, 다중벽 탄소나노튜브를 5 wt%, 폴리카보네이트 펠렛 95 wt%를 고속 믹서로 분산 혼합하여 혼합분말을 준비한 후 270 °C 온도의 핫프레스에 위치시켜 용융시킨 후 10분 동안 10 MPa의 압력을 가한 후 상온으로 냉각시켜 60  $\mu\text{m}$  두께의 다중벽 탄소나노튜브가 분산된 열가소성 수지 필름을 얻었다. 이때, 60  $\mu\text{m}$  두께의 균일한 필름을 제조하기 위해 60  $\mu\text{m}$  두께 게이지를 사용하였다.
- [0094] 상기 실시예 1과 동일한 10 x 10 mm 크기의 탄소섬유 직물 층 일면 위에 상기 재단된 열가소성 수지 필름을 적층한 후, 핫프레스를 이용하여 270 °C에서 10분 동안 10 MPa의 압력을 가한 후 상온으로 냉각시켜 1 cm 두께의 복합재료 시편을 제조하였다.
- [0095] 상기 제조된 복합재료에서 상기 열가소성 수지 필름이 용융되어 함침되지 않은 부분을 나이프로 긁어낸 후, 상기 열가소성 수지 필름이 탄소섬유 직물에 완전히 침투하여 일체화된 부분만을 추출하여 450 °C 퍼니스(Furnace)에서 넣고, 매트릭스 섬유만을 태우는 과정을 거친 후 남은 탄소섬유의 중량을 계산한 결과, 탄소섬유의 중량은 4.2 mg이었다. 이러한 결과를 통해 비교예 1의 경우 필름 형태인 열가소성 수지 필름을 매트릭스로 사용한 것으로, 실시예 1에 비해 낮은 함침성을 가짐으로써 얻어진 결과임을 알 수 있다.

도면

도면1

