

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2020년 7월 9일 (09.07.2020)



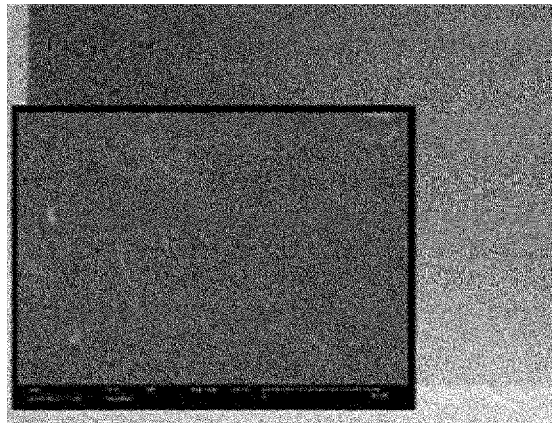
(10) 국제공개번호
WO 2020/141925 A1

- (51) 국제특허분류: *H05K 7/20* (2006.01) *C08K 5/14* (2006.01)
C08K 9/04 (2006.01) *C08L 9/06* (2006.01)
C08K 5/00 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2020/000108
- (22) 국제출원일: 2020년 1월 3일 (03.01.2020)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2019-0000820 2019년 1월 3일 (03.01.2019) KR
10-2019-0001139 2019년 1월 4일 (04.01.2019) KR
- (71) 출원인: 주식회사 아모그린텍 (AMOGREENTECH CO., LTD.) [KR/KR]; 10014 경기도 김포시 통진읍 김포대로1950번길 91, Gyeonggi-do (KR).
- (72) 발명자: 황승재 (HWANG, Seung Jae); 21357 인천시 부평구 길주남로10번길 21, 115동 2004호 (부평동, 래미안), Incheon (KR). 이진형 (LEE, Jin Hyoung); 10077 경기도 김포시 김포한강11로 38, 105동 602호 (운양동, 모담마을 한강화성파크드림아파트), Gyeonggi-do (KR).
- (74) 대리인: 특허법인 이룸리온 (ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM); 06575 서울시 서초구 사평대로 108, 3층 (반포동), 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,

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING HEAT DISSIPATION SHEET

(54) 발명의 명칭: 방열 시트 제조방법

[도4]



(57) Abstract: A method for manufacturing a heat dissipation sheet is provided. A heat dissipation sheet, according to one embodiment of the present invention, is manufactured by comprising the steps of: (1) preparing a preliminary sheet comprising a matrix forming component, a crosslinking agent, and a heat dissipation filler; and (2) manufacturing a heat dissipation sheet by crosslinking the matrix forming component included in the preliminary sheet. According to this, the manufactured heat dissipation sheet can be provided with a high content of the heat dissipation filler, so that heat dissipation performance thereof is remarkably excellent. In addition, it is possible to minimize and prevent breakage, shrinkage, pore generation, thickness variation, etc. of the sheet caused by the material properties of the matrix forming component and the crosslinking of the matrix forming component to form a matrix despite being implemented to have excellent heat dissipation performance, and it is possible to have excellent flexibility. Furthermore, as the processability is improved through a cooling process or the like during the manufacture of the heat dissipation sheet, the heat dissipation sheet is very excellent in productivity and may be suitable for mass production.

[다음 쪽 계속]



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 역
내 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), 유
럽 (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:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(57) 요약서: 방열시트 제조방법이 제공된다. 본 발명의 일 실시예에 따른 방열시트는 (1) 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 예비시트를 제조하는 단계, 및 (2) 상기 예비시트에 포함된 매트릭스 형성성분을 가교시켜서 방열시트를 제조하는 단계를 포함하여 제조된다. 이에 의하면, 제조된 방열시트는 방열필러를 고함량으로 구비할 수 있어서 방열성능이 현저히 우수하다. 또한, 우수한 방열성능을 갖도록 구현됨에도 매트릭스 형성성분의 재질적 특성과 매트릭스 형성성분이 가교되어 매트릭스를 형성함으로 인해서 시트의 깨짐, 수축, 기공발생, 두께 변화 등이 최소화 또는 방지되며, 우수한 유연성을 가질 수 있다. 나아가 방열시트 제조 시 냉각공정 등을 통해서 공정성이 개선됨에 따라서 생산성이 매우 우수하며, 대량생산에 적합할 수 있다.

명세서

발명의 명칭: 방열 시트 제조방법

기술분야

- [1] 본 발명은 방열시트 제조방법에 관한 것이며, 더욱 상세하게는 유연하고 방열특성이 우수하면서도 공정성이 개선됨에 따라서 생산성이 현격히 향상된 방열시트 제조방법에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 방열을 목적하지 않았으나 작동 시 발열되는 부품을 갖는 기구, 장치에서 발열은 해당 부품의 기능을 저하시킬 뿐만 아니라 주변 부품의 기능 저하, 오작동 유발, 열화에 따른 기능소실 등 각종 문제를 양산한다. 이에 따라 발열문제를 해결하기 위한 방열구조에 대한 연구는 각종 산업분야에서 오랜 기간 계속되어 왔다. 이러한 연구의 결과물으로써 종래에는 방열팬, 방열핀, 히트파이프 등의 다양한 방열 기구들이 개발되었으며, 최근에는 방열패드, 방열시트, 방열도료 등의 다양한 방열 소재들도 개발되어서 종래의 방열 기구를 보조하거나 대체하고 있다.
- [3] 이 중에서 방열시트는 방열도료 보다 방열특성은 우수하면서도 두께가 얇아 기구나 장치의 구조적 설계변경 없이, 또는 약간의 구조적 설계변경만으로도 쉽게 기구나 장치에 적용될 수 있어서 각종 에너지 분야, 건축분야, 군수분야, 자동차 분야, 의료분야 등 다양한 분야에서 최근 이에 대한 개발이 활발히 이루어지고 있다.
- [4] 그러나 방열 성능이 높다고 알려진 재료들은 일반적으로 저항이 낮고, 고유전율을 가짐으로써 방열 소재가 적용되는 기구, 장치 내 다른 부품의 성능을 저하시키거나, 상기 부품을 통한 기능을 상실케 하는 문제점이 발생하고 있다. 또한, 발열원의 구조에 따라서 적용면에 단차가 존재할 수 있는데, 종래의 방열시트는 유연성이 좋지 못해 단차가 있는 적용면과 밀착성이 좋지 못한 문제가 있다. 나아가 종래의 방열시트 내 방열소재의 함량수준 및 이에 기인한 방열수준은 여전히 요구되는 정도에 미치지 못하고 있는 실정이다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [5] 본 발명은 상기와 같은 점을 감안하여 안출한 것으로, 낮은 유전율로 설계됨에도 불구하고 우수한 방열성능을 갖는 방열시트 제조방법을 제공하는데 목적이 있다.
- [6] 또한, 본 발명은 우수한 방열성능을 갖도록 설계됨에도 시트의 깨짐, 수축, 기공발생이 최소화 또는 방지되며, 우수한 유연성을 갖는 방열시트 제조방법을 제공하는데 다른 목적이 있다.
- [7] 나아가 본 발명은 공정성이 개선됨에 따라 생산성이 현격히 향상된 방열시트

제조방법을 제공하는데 또 다른 목적이 있다.

과제 해결 수단

- [8] 상술한 과제를 해결하기 위하여 본 발명은 (1) 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 예비시트를 제조하는 단계, 및 (2) 상기 예비시트에 포함된 매트릭스 형성성분을 가교시켜서 방열시트를 제조하는 단계를 포함하는 방열시트 제조방법을 제공한다.
- [9] 본 발명의 실시예에 의하면, 상기 예비시트 내 매트릭스 형성성분은 비가교 상태 또는 일부 가교 상태일 수 있다.
- [10] 또한, 상기 (2) 단계는 적어도 1장의 상기 예비시트에 대하여 열 및 압력을 가하면서 가교시키는 단계, 및 가교시킨 예비시트를 압력을 가하면서 냉각시키는 단계를 포함할 수 있다.
- [11] 또한, 상기 가교시키는 단계는 2 ~ 5장의 예비시트를 적층시킨 상태로 압력을 가하면서 수행할 수 있다.
- [12] 또한, 상기 가교시키는 단계와 냉각시키는 단계는 서로 온도가 상이한 제1프레스 및 제2프레스트를 통해 수행할 수 있다.
- [13] 또한, 상기 가교시키는 단계는 100 ~ 180°C 온도로 10 ~ 60분 동안 수행하며, 상기 냉각시키는 단계는 20 ~ 60°C 온도로 10 ~ 60분 동안 수행할 수 있다.
- [14] 또한, 상기 방열필러는 평균입경이 1 ~ 40 μm 이며, 방열시트 전체 중량 기준하여 85중량% 이상 구비될 수 있다.
- [15] 또한, 상기 방열필러는 입경이 1 ~ 5 μm 인 제1방열필러, 입경이 10 ~ 20 μm 인 제2방열필러 및 입경이 25 ~ 40 μm 인 제3방열필러를 1: 1.5 ~ 3 : 3.5 ~ 5의 중량비로 포함할 수 있다.
- [16] 또한, 상기 방열필러는 히드록시기, 알킬기, 아민기 및 아닐린기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 작용기로 표면개질된 것일 수 있다.
- [17] 또한, 상기 매트릭스 형성성분은 이소프렌 고무(IR), 부타디엔 고무(BR), 스티렌-부타디엔 고무(SBR), 에틸렌 프로필렌 디엔 모노머(EPDM) 고무, 아크릴 고무, 니트릴-부타디엔 고무(NBR) 및 실리콘 고무로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 고무계 성분을 포함할 수 있다.
- [18] 또한, 상기 가교제는 이소시아네이트계 및 퍼옥사이드계로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [19] 또한, 하기 수학적 식 1에 따라 계산한 두께 감소율이 20% 이상일 수 있다.
- [20] [수학적 식 1]
- [21]
$$\text{두께 감소율}(\%) = \frac{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$
- [22] 또한, 상기 매트릭스 형성성분은 고무계 성분이며, 제조된 방열시트는 40°C에서 50시간 방치 후 하기 수학적 식 2에 따라 계산한 두께 변화율이 10% 미만일 수 있다.

[23] [수학식 2]

$$[24] \quad \text{두께 변화율(\%)} = \frac{\text{방치 후 방열시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[25] 또한, 상기 매트릭스 형성성분은 스티렌-부타디엔 고무(SBR)이며, 상기 가교제는 퍼옥사이드계일 수 있다.

[26] 또한, 상기 방열시트는 밀도가 1.6g/m³ 이상일 수 있다.

발명의 효과

[27] 본 발명에 의하여 제조된 방열시트는 고밀도로 설계됨에 따라서 방열특성이 현저히 우수하다. 또한, 우수한 방열성능을 갖도록 설계됨에도 시트의 깨짐, 수축, 기공발생, 두께 변화 등이 최소화 또는 방지되며, 우수한 유연성을 가질 수 있다. 나아가 공정성이 개선됨에 따라서 생산성이 매우 우수하며, 대량생산에 적합할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[28] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 의한 방열시트에 구비된, 표면 개질되지 않은 질화붕소의 표면 SEM 사진,

[29] 도 2는 본 발명의 일 실시예에 의한 방열시트에 구비된, 표면 개질된 질화붕소의 표면 SEM 사진,

[30] 도 3은 가교시킨 뒤 냉각공정을 수행하지 않은 본 발명의 일 실시예에 의한 방열시트의 표면에 대한 SEM 사진, 그리고

[31] 도 4는 가교시킨 뒤 냉각공정을 더 수행한 본 발명의 일 실시예에 의한 방열시트의 표면에 대한 SEM 사진이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[32] 이하, 본 발명의 실시예에 대하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다.

[33]

[34] 본 발명의 일 실시예에 의한 방열시트는 (1) 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 예비시트를 제조하는 단계 및 (2) 상기 예비시트에 포함된 매트릭스 형성성분을 가교시켜서 방열시트를 제조하는 단계를 포함하여 제조될 수 있다.

[35] 먼저, 본 발명에 따른 (1) 단계로서 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 예비시트를 제조하는 단계를 수행한다.

[36] 상기 예비시트는 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 시트 형성 조성물이 통상의 시트 형성방법을 통해 시트 형상으로 구현된 것일 수 있다.

[37] 또한, 상기 시트 형성 조성물은 매트릭스 형성성분 등을 용해하기에 적합한

공지된 용매를 더 포함할 수 있으며, 상기 예비시트는 시트 조성물에 포함된 용매가 건조된 상태일 수 있다. 또는 상기 예비시트는 상기 가교제를 통해 상기 매트릭스 형성성분의 일부가 가교된 상태일 수도 있다.

- [38] 상기 매트릭스 형성성분은 후술하는 가교제를 통해 가교되어 매트릭스를 형성하는 성분으로서, 시트 형상을 유지하도록 하는 성분이다. 상기 매트릭스 형성성분은 통상적인 시트를 제조하는데 사용되는 유기화합물을 통해 형성된 것일 수 있다. 일례로 상기 매트릭스 형성성분은 고밀도폴리에틸렌, 폴리카보네이트, 폴리아미드, 폴리아미드, 폴리비닐클로라이드, 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 변성 폴리프로필렌에테르(PPE), 폴리에틸렌이미드(PEI), 폴리이더이더케톤(PEEK), 아크릴로나이트릴-부타디엔-스티렌(ABS), 에폭시계, 아크릴계, 폴리우레탄, 이소프렌 고무(IR), 부타디엔 고무(BR), 스티렌-부타디엔 고무(SBR), 에틸렌 프로필렌 디엔 모노머(EPDM) 고무, 아크릴 고무, 니트릴-부타디엔 고무(NBR), 및 실리콘 고무로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상일 수 있다. 또한, 방열시트 내 방열필러의 함량을 보다 향상시키기 위해서 낮은 밀도를 갖는 매트릭스 형성성분을 사용하는 것이 좋을 수 있고, 일례로 밀도가 1g/m^3 이하인 것일 수 있다. 만일 밀도가 큰 매트릭스 형성성분을 사용할 경우 시트내 구비시킬 수 있는 방열필러의 함량을 높이기 어려울 수 있고, 이에 따라서 충분한 방열특성의 달성이 어려울 수 있다.

- [39] 또한, 상기 매트릭스 형성성분은 적정 범위의 중량평균분자량을 가질 수 있고, 이를 통해 방열시트 내 방열필러의 함량을 현저히 향상시킬 수 있다. 일례로 상기 매트릭스 형성성분은 중량평균분자량이 65만 ~ 125만인 고무계 성분일 수 있다. 만일 매트릭스 형성성분의 중량평균분자량이 너무 크면 방열필러의 함량을 높이기 어려울 수 있고, 반대로 너무 작으면 방열필러의 함량을 현저히 향상시키기에 유리하나 열전도도 측면에서 불리할 수 있다.

- [40] 한편, 방열시트가 적용되는 발열체의 일면은 단차가 형성된 것일 수 있는데, 만일 방열시트가 유연성이 작은 경우 단차가 형성된 면에 밀착력이 좋지 않을 있고, 밀착력을 높이기 위해 가압하여 밀착시킬 경우 방열시트가 깨지거나 손상될 수 있으며, 이로 인해 방열특성이 현저히 저하될 우려가 있다. 또한, 폴리우레탄과 같은 일부 매트릭스 형성성분의 경우 유연성 특성은 좋을 수 있으나 시트로 제조된 후 수축현상이 발생하거나, 제조된 시트 내 기공이 발생하는 등의 우려가 있을 수 있다.

- [41] 이에 따라서 본 발명의 일 실시예에 따른 매트릭스 형성성분은 유연성의 향상 및 위와 같은 수축문제, 기포발생 문제를 방지하기 위해 고무계 매트릭스 형성성분을 사용할 수 있다. 상기 고무계 매트릭스 형성성분은 일례로 이소프렌 고무(IR), 부타디엔 고무(BR), 스티렌-부타디엔 고무(SBR), 에틸렌 프로필렌 디엔 모노머(EPDM) 고무, 아크릴 고무, 니트릴-부타디엔 고무(NBR), 및 실리콘 고무로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 사용할 수 있다. 일례로 상기 고무계 매트릭스 형성성분은 스티렌-부타디엔 고무일 수 있는데, 다른 종류에 대비해

용매에 대한 우수한 용해성, 생산단가가 낮고, 가교제 선택의 폭이 증가하고, 밀도가 낮으며, 후술하는 방열필러와의 계면특성과 구현된 시트품질이 다른 종류의 고무계 성분보다 우수한 이점이 있다.

[42]

[43] 다음으로 가교제에 대해 설명한다. 상기 가교제는 시트의 기계적 강도를 보완하고 밀도를 증가시키기 위해서 매트릭스 형성성분과 함께 포함된다. 특히, 매트릭스 형성성분 중 고무계 매트릭스 형성성분은 일정수준 이상의 탄성복원력을 가짐에 따라서 시트 내 방열필러를 고함량으로 구비시키면서도 얇은 두께로 구현하기 용이하지 않다. 즉, 방열시트의 밀도를 높이기 위해서 방열시트를 압착시키는 공정을 거칠 수 있는데, 고무계 매트릭스 형성성분으로 구현된 시트는 목적하는 소정의 두께로 압착 후에도 소정의 시간이 경과한 뒤에는 탄성복원력에 의해 압착 전 두께로 회복됨에 따라서 방열시트의 밀도를 증가시키기 용이하지 않다. 이에 매트릭스 형성성분 이외에 가교제를 포함하며, 이를 통해 압착 후 밀도를 시간이 경과하더라도 유지할 수 있으며 매트릭스 형성성분 간 결합력의 증가로 기계적 강도가 향상될 수 있는 이점이 있다. 또한, 방열시트의 두께방향으로 방열필러 간 거리가 가까워지거나 방열필러간 접촉이 발생할 수 있어서 수직방향으로의 열전도도 향상에 보다 유리할 수 있다.

[44]

상기 가교제는 선택되는 매트릭스 형성성분의 가교에 적합한 공지된 가교제의 경우 제한없이 사용할 수 있다. 상기 매트릭스 형성성분이 고무계 매트릭스 형성성분일 경우 상기 가교제는 폴리올레핀계, 이소시아네이트계 및 퍼옥사이드계로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 것일 수 있다. 상기 폴리올레핀계, 이소시아네이트계 및 퍼옥사이드계 가교제의 구체적 종류는 공지된 종류를 사용할 수 있어서 본 발명은 이에 대해서 특별히 한정하지 않으며, 일례로 상기 이소시아네이트계 가교제는 헥사메틸렌다이소시아네이트(HMDI)일 수 있다. 또한, 상기 퍼옥사이드계 가교제는 비스(tert-부틸퍼옥시-2-아이소프로필)벤젠(Bis(tert-butylperoxy-2-isopropyl)benzene)일 수 있다.

[45]

한편, 상기 가교제는 방열시트의 밀도를 현저히 증가시키기 유리한 측면에서 보다 바람직하게는 이소시아네이트계 및 퍼옥사이드계로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상일 수 있다. 보다 더 바람직하게는 퍼옥사이드계 가교제일 수 있다. 나아가 퍼옥사이드 가교제는 고무계 성분으로써 스타이렌-부타디엔 고무를 사용할 때 상승한 효과, 경화시간 단축 등에 더욱 상승된 효과를 달성할 수 있는 이점이 있다.

[46]

또한, 상기 가교제는 상기 매트릭스 형성성분 100 중량부에 대하여 0.5 ~ 10 중량부, 보다 바람직하게는 0.5 ~ 5 중량부로 구비될 수 있으며, 가교제의 함량이 0.5 중량부 미만일 경우 방열시트의 시트형성성, 형태 안정성, 및 내열성이 저하될 수 있으며, 목적하는 수준으로의 방열시트 밀도를 구현하기 어려울 수

있다. 또한, 상기 가교제의 함량이 10중량부를 초과할 경우 경도가 커지고 유연성이 저하될 우려가 있다.

[47]

[48] 또한, 상기 방열필러는 방열시트에 열전도성을 부여하는 성분이다. 상기 방열필러는 열전도성이 있다고 공지된 방열필러의 경우 제한 없이 사용할 수 있고, 일예로 금속, 세라믹, 탄소계 방열필러일 수 있다. 상기 금속의 경우 알루미늄, 마그네슘, 구리, 니켈, 은, 금 등 1종 또는 이들의 혼합물 또는 이들의 합금일 수 있다. 또한, 상기 세라믹의 경우 일 예로서 알루미늄, 탄화규소, 산화마그네슘, 이산화티타늄, 이산화규소, 이트리아, 지르코니아, 질화알루미늄, 질화규소, 질화붕소, 실리카, 산화아연, 티탄산바륨, 티탄산스트론튬, 산화베릴륨, 단결정 실리콘 및 산화망간 중 1종 이상을 포함할 수 있다. 또한, 상기 탄소계의 경우 그래파이트, 그래핀, 탄소나노튜브, 풀러렌, 카본블랙 등 1종 이상을 포함할 수 있다. 또한, 상기 방열필러는 그래파이트 표면에 금속이나 세라믹인 나노입자를 구비하거나, 상기 나노입자 상에 폴리도파민층이 더 구비된 그래파이트 복합체일 수 있다. 한편, 상기 방열필러는 목적하는 방열성능이나, 부가적인 절연성능을 고려해서 적절히 선택할 수 있다.

[49]

[50] 또한, 상기 방열필러는 형상이 구상 또는 판상의 입상일 수 있으며, 수평방향으로의 열전도도 향상의 측면에서 판상형일 수 있다. 발열체는 발열체를 구성하는 모든 부품에서 발열이 발생할 수 있지만, 어느 특정 부품에서 발열이 증가되는 핫스팟 영역이 있을 수 있고, 이 경우 수평방향으로의 열전도도는 상기 핫스팟에 집중된 열을 주변으로 분산시켜 발열이 집중되는 것을 방지하는 이점이 있다.

[51]

또한, 상기 방열필러는 평균입경이 1 ~ 200 μm 일 수 있다. 다만, 본 발명의 일 실시예에 의하면 상기 방열필러는 평균입경이 50 μm 이하, 보다 바람직하게는 40 μm 이하, 더 바람직하게는 20 ~ 40 μm , 일예로 20 ~ 33 μm 일 수 있으며, 이러한 입경의 방열필러가 방열시트 내 90중량% 이상의 고함량으로 구비될 수 있다. 방열필러의 입경을 적절한 수준으로 조절할 경우 방열시트 내 고함량으로 방열필러를 구비시키기 용이해지고, 시트형성성도 향상되는 이점이 있으며, 시트 형성 후 방열필러가 표면에 묻어나는 현상이 방지되어 표면품질이 향상될 수 있다. 만일 방열필러의 평균입경이 40 μm 를 초과할 경우 유기화합물을 통해 구현되는 매트릭스 내 고함량으로 구비시키기도 어려울뿐더러, 고함량으로 구비되도록 제조하더라도 시트 형성이 매우 용이하지 않고, 표면품질이 저하될 우려가 있다. 다만, 상기 방열필러는 평균입경이 1 μm 이상, 보다 바람직하게는 20 μm 이상일 수 있는데, 이를 통해 매트릭스 내 분산성 및 함유량을 더욱 증가시킬 수 있어서 이를 통해 열전도성을 보다 향상시킬 수 있는 이점이 있다. 한편, 본 발명에서 방열필러의 입경은 형상이 구상인 경우 직경이며, 형상이 다면체이거나 비정형일 경우 표면의 서로 다른 두 지점 간 직선거리 중

최장거리를 의미한다.

- [52] 또한, 방열시트 내 보다 향상된 함량으로 방열필러가 구비되기 위하여 상기 방열필러는 서로 다른 입경을 갖는 몇 개의 입경군으로 설계될 수 있다. 일례로 상기 방열필러는 입경이 1 ~ 5 μm 인 제1방열필러, 입경이 10 ~ 20 μm 인 제2방열필러 및 입경이 25 ~ 40 μm 인 제3방열필러를 1: 1.5 ~ 3 : 3.5 ~ 5의 중량비로 포함될 수 있고, 이를 통해 방열시트 내 방열필러의 함량을 현저히 증가시킬 수 있다. 만일 방열필러의 입경분포가 위와 같은 범위를 벗어나는 경우 방열시트 내 방열필러를 고함량으로 구비시키기 어려울 수 있다.
- [53] 또한, 상기 방열필러는 매트릭스 형성성분이 가교되어 구현된 매트릭스 내 분산된 형태로 구비되는데, 매트릭스와 방열필러 간 형성된 계면은 이종재질로 인한 낮은 상용성으로 인해서 계면에서의 열전도도 특성이 좋지 않을 수 있고, 이로 인해 방열필러가 우수한 열전도도를 갖더라도 방열시트의 방열성능이 낮게 구현될 수 있다. 또한, 상기 계면에서는 들뜸현상도 있을 수 있는데, 이 경우 방열성능이 더욱 저하될 수 있고, 해당 부분에서 크랙이 발생하는 등 방열시트의 내구성이 저하될 우려가 있다. 이에 따라서 상기 방열필러는 후술하는 매트릭스와 계면특성의 향상을 위해서 표면처리 되거나 표면개질 된 것을 사용할 수 있다.
- [54] 상기 표면처리는 방열필러의 표면에 묻어있는 이종의 무기물이나 불순물을 제거하는 것일 수 있고, 이러한 표면처리를 통해 방열필러 자체의 열전도 특성을 온전히 발휘시키고, 상기 매트릭스와의 계면특성 향상에 유리할 수 있다.
- [55] 또한, 상기 표면개질은 방열필러와 매트릭스 형성성분 간 상용성을 증가시킬 수 있는 공지된 개질의 경우 제한없이 이용될 수 있다. 일례로 상기 표면개질은 방열필러의 표면에 히드록시기, 알킬기, 알칸기, 아민기 및 아닐린기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 작용기를 구비시키는 개질일 수 있고, 바람직하게는 히드록시기, 아민기 및 아닐린기 중 1종 이상을 사용할 수 있으며, 더 바람직하게는 아민기 및 아닐린기일 수 있다.
- [56] 상기 표면처리나 표면개질은 공지된 방법을 채용하여 수행할 수 있는데, 일례로 산처리를 통해 수행할 수 있다. 상기 산처리는 질산계, 황산계, 알루미늄계, 및 타이타늄계 등의 산성용액을 방열필러에 처리하여 수행할 수 있으며, 바람직하게는 황산계나, 질산계가 보다 향상된 열전도 특성을 발현시키기에 좋다. 상기 산처리를 통해 방열필러의 표면에 묻어 있는 무기물이나 오염물질의 제거뿐만 아니라 히드록시기 작용기를 표면에 구비시킬 수 있다.
- [57] 한편 도 1은 산처리 전 방열필러의 일예인 질화붕소의 SEM 표면 사진인데, 도 2에서 확인할 수 있듯이 산처리 후 질화붕소의 표면을 보다 거칠게 변화시킬 수 있다. 이와 같은 방열필러 표면의 거칠기 증가와 같은 표면 모폴로지 변화는 매트릭스와의 계면에서의 결합력을 구조적으로 향상시키는 효과가 있고, 이를 통해 향상된 열전도 특성과 내구성 등을 달성하기에 유리하다.

- [58] 일예로 상기 산처리 수행방법에 대해 설명하면, 방열필러를 산성용액 100g 당 6 ~ 30g 투입한 뒤, 20 ~ 100°C 조건에서 1 ~ 10시간 동안 교반하고, 이후 물에 방열필러를 투입하여 중화 시킨 뒤 증류수로 세척하는 공정을 거칠 수 있다. 이때 상기 산성용액에 투입한 뒤 교반하는 단계에서는 교반 중 또는 교반 후 부가적으로 초음파를 더 가할 수 있다.
- [59]
- [60] 또한, 상기 용매는 톨루엔, 자일렌, 메틸에틸케톤 등과 같은 비극성 용매가 사용될 수 있다. 일예로, 상기 용매의 함량은 상기 바인더 수지 100 중량부에 대하여 100 내지 1,000 중량부일 수 있으며, 시트 형성방법에 따라서 적절한 점도를 고려하여 그 함량은 조절될 수 있다.
- [61]
- [62] 상기 시트 조성물은 방열필러를 균일하게 분산하고 적절한 점도를 얻기 위하여 3-Roll-Mill 및/또는 PL mixer를 사용하여 교반공정을 수행할 수 있다. 상기 교반공정은 방열필러의 분산성을 향상시키고, 방열시트의 열전도도, 밀도 및 유연성을 향상시키기 위해 3-Roll-Mill과 같은 고출력 분산기를 사용할 수 있다.
- [63] 또한, 교반 공정에서 발생하는 기포를 제거하기 위한 탈포공정을 상기 교반공정과 함께, 또는 교반공정 후 수행할 수 있다.
- [64] 이후 균질하게 제조된 시트 조성물은 점도가 일예로 1500 ~ 3500cps일 수 있으며, 다른 일예로 2000 ~ 3000cps일 수 있다. 또한, 시트 형성 조성물은 통상의 방법으로 예비시트로 제조될 수 있는데, 일예로 기관 상에 처리하여 시트 형상을 할 수 있다. 상기 시트 조성물을 기관상에 처리하는 방법은 공지된 코팅방법을 채용할 수 있으며, 일예로 콤팩트 코터를 이용한 나이프 코팅이 이용될 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.
- [65] 또한, 기관 상에 시트 상으로 처리된 시트 조성물은 70°C 내지 130°C에서 건조될 수 있다. 다른 일예로 상기 시트 조성물은 초기 온도 70 ~ 85°C에서 건조가 시작된 후 건조온도를 상승시켜 최종 110 ~ 130°C 온도에서 건조를 종료할 수 있다. 또한, 건조시간은 건조온도에 따라서 달라질 수 있으므로 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다. 한편, 건조까지 완료된 예비시트는 날 장의 두께가 80 ~ 150 μ m일 수 있으나 이에 제한되는 것은 아니다.
- [66]
- [67] 다음으로 (2) 단계로서 예비시트에 포함된 매트릭스 형성성분을 가교시켜 방열시트를 제조하는 단계를 수행한다.
- [68] 상기 (2) 단계에서 수행되는 매트릭스 형성성분의 가교는 매트릭스 형성성분의 종류와 가교제의 종류에 따라서 적절한 방법으로 가교반응이 수행될 수 있다. 일예로 가교반응은 열처리에 의한 열 가교반응이나 광 조사에 의한 광 가교반응일 수 있다.
- [69] 본 발명의 일 실시예에 의한 상기 (2) 단계는 적어도 1장의 상기 예비시트에 대하여 열 및 압력을 가하면서 가교시키는 단계 및 가교시킨 예비시트를

냉각시키는 단계를 포함할 수 있다.

- [70] 상기 가교시키는 단계는 압력을 가하면서 열 가교반응을 유도할 수 있는데, 이를 통해 목적하는 두께를 구현하는 것 이외에 방열시트의 밀도를 높이고, 단위부피 당 방열필러의 함량을 더욱 높일 수 있는 동시에, 가해지는 압력에 따라서 방열필러간 거리가 짧아질 수 있어서 방열특성을 보다 향상시킬 수 있는 이점이 있다. 또한, 방열필러의 형상이 판상형일 경우 방열시트 내에서 수평방향으로의 배향성이 향상되고, 방열필러 간 수직거리는 짧아져서 수평방향 및 수직방향의 방열특성을 모두 향상시킬 수 있는 이점이 있다. 이때 가해지는 압력은 $2.5 \sim 5\text{kgf/mm}^2$ 의 일 수 있으며, 이를 통해 본 발명이 목적하는 효과를 달성하기 유리할 수 있다.
- [71] 또한, 상기 가교시키는 단계에서 가해지는 열은 100 내지 180°C , 보다 바람직하게는 $110 \sim 170^\circ\text{C}$, 더 바람직하게는 $150 \sim 180^\circ\text{C}$ 일 수 있고, 수행시간은 $10 \sim 60$ 분, 보다 바람직하게는 $15 \sim 55$ 분일 수 있다.
- [72] 또한, 상기 냉각시키는 단계는 열을 통한 가교 후에 실온에서 방치 시 발생하는 매트릭스 팽창에 따른 밀도감소, 두께 불균일 문제를 방지하는 단계로서, 보다 고밀도이면서 균일한 두께 갖는 방열시트를 구현시키는 이점이 있다. 또한, 냉각시키는 단계를 통해서 보다 우수한 표면품질을 갖는 방열시트를 구현시킬 수 있는데, 도 3 및 도 4에 도시된 것과 같이 열을 통해 가교 시킨 뒤 냉각시키는 단계를 수행하지 않은 도 3의 방열시트 표면에 대비해서 냉각시키는 단계를 수행한 도 4의 방열시트의 표면품질이 더 우수한 것을 확인할 수 있다.
- [73] 상기 냉각시키는 단계는 제조된 방열시트를 60°C 이하의 온도, 보다 바람직하게는 $18 \sim 60^\circ\text{C}$, 더 바람직하게는 $18 \sim 50^\circ\text{C}$ 로 냉각되었을 때 종료될 수 있다. 또한, 냉각시키는 단계는 수행시간이 $10 \sim 60$ 분, 보다 바람직하게는 $15 \sim 55$ 분일 수 있다. 또한, 냉각속도는 일예로 $5 \sim 30^\circ\text{C}/\text{분}$ 일 수 있다. 만일 냉각온도가 60°C 를 초과하면 두께 변동의 우려가 있으며, 냉각 시키는 공정에서 방열시트가 냉각장치, 일예로 프레스 표면에 들러붙어서 잘 떨어지지 않을 수 있고, 이로 인해 방열시트 표면 품질의 저하가 현격히 증가하며, 생산성이 저하될 우려가 있다.
- [74] 또한, 상기 냉각시키는 단계 역시 압력을 가하면서 수행될 수 있고, 이를 통해 방열시트의 두께 변동을 최소화할 수 있는 이점이 있다. 이때 가해지는 압력은 일예로 $2.5 \sim 5\text{kgf/mm}^2$ 의 일 수 있다.
- [75]
- [76] 한편, 상기 가교시키는 단계는 및 냉각시키는 단계는 서로 온도가 상이한 제1프레스 및 제2프레스를 통해 압력을 가하면서 수행될 수 있다. 이 경우 1개의 프레스를 이용해서 온도 조건을 변경하여 수행할 때에 대비해 생산성을 보다 향상시킬 수 있고, 가교시키는 단계와 냉각시키는 단계 사이의 시간을 최소화하거나 목적하는 수준으로 쉽게 조절할 수 있어서 방열시트의 품질을 향상시킬 수 있는 이점이 있다. 상기 제1프레스의 온도 및 가압시간은 상술한

가교시키는 단계에서의 온도 및 수행 시간일 수 있고, 제2프레스의 온도 및 가압시간은 상술한 냉각시키는 단계에서의 온도 및 수행 시간일 수 있다.

[77]

[78] 한편, 가교시키는 단계는 2~5장의 예비시트를 적층시킨 상태로 압력을 가하면서 수행될 수 있는데, 1장의 예비시트에 대해서 압력을 가하면서 가교시키는 것보다 여러 장으로 적층된 예비시트에 압력을 가하면서 가교시키는 것이 목적하는 수준의 방열시트 두께, 밀도 등을 구현하고, 생산성을 향상시키는데 있어서 보다 유리할 수 있다. 만일 예비시트가 5장을 초과해 적층될 경우 가압하는 과정에서 예비시트의 밀림이 발생할 수 있어서 균일한 가압이 수행되지 않을 수 있고, 방열시트 위치 별로 두께 편차가 발생할 우려가 있다.

[79] 한편, 예비시트 1장의 두께가 매우 얇은 경우(예를 들어 40 μm 이하) 예비시트를 적층시키는 것이 공정상 용이하지 않을 수 있어서 이 경우 여러 장 적층시키지 않고 1장에 대해 (2) 단계를 수행함이 바람직하다.

[80] (2) 단계를 수행해서 제조된 방열시트의 날장 두께는 일예로 60 μm 이하 일 수 있고, 다른 일예로 30~60 μm 일 수 있다.

[81]

[82] 한편, 상술한 (1)단계를 통해 제조되는 예비시트와 (2) 단계를 통해 제조된 방열시트는 하기의 수학식 1에 따른 두께 감소율이 20%이상, 보다 바람직하게는 25%, 더욱 바람직하게는 40% 이상일 수 있으며, 이를 통해 방열시트 내 방열필러의 고함량 및 고밀도 설계가 가능한 이점이 있고, 방열특성 향상에 보다 유리할 수 있다.

[83] [수학식 1]

$$[84] \quad \text{두께 감소율(\%)} = \frac{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[85] 또한, (2) 단계를 통해서 제조된 방열시트는 매트릭스 형성성분이 고무계 성분인 경우에도 40°C에서 50시간 방치 후 하기 수학식 2에 따라 계산한 두께 변화율이 10% 이하, 보다 바람직하게는 5% 이하, 이 보다 바람직하게는 2% 이하일 수 있고, 이 보다 바람직하게는 1% 이하, 더 바람직하게는 0.5% 이하일 수 있으며, 이를 통해 방열시트의 구현 후 두께가 변동하거나 불균일해지는 형상 변형에 따른 품질저하나 두께가 커짐에 따라서 발생하는 방열특성 저하를 최소화 할 수 있는 이점이 있다.

[86] [수학식 2]

$$[87] \quad \text{두께 변화율(\%)} = \frac{\text{방치 후 방열시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[88]

[89] 한편, 상술한 제조방법을 통해서 구현된 본 발명의 일 실시예에 의한

방열시트는 매트릭스 형성성분이 가교되어 형성된 매트릭스 내 방열필러가 분산된 구조를 가질 수 있다.

- [90] 또한, 상기 방열시트는 방열필러가 방열시트 전체 중량의 85중량% 이상, 보다 바람직하게는 90중량% 이상, 보다 더 바람직하게는 95중량% 이하로 구비된 상태로 밀도가 $1.6\text{g}/\text{m}^3$ 이상, 보다 바람직하게는 $1.7\text{g}/\text{m}^3$ 이상, 보다 더 바람직하게는 $1.8\text{g}/\text{m}^3$ 이상 일 수 있고, 이를 통해 매우 얇은 두께로 구현되면서도 방열필러가 높은 충진율로 분산된 것일 수 있어서 우수한 방열특성을 달성하기에 유리할 수 있다. 한편, 방열필러가 방열시트 내 95중량%를 초과해서 구비되는 경우 시트형성이 어렵고, 쉽게 깨질 수 있는 우려가 있다.

[91]

- [92] 또한, 방열시트는 열전도도가 $25\text{W}/\text{mk}$ 이상, 보다 바람직하게는 $29\text{W}/\text{mk}$ 이상, 보다 더 바람직하게는 $33\text{W}/\text{mk}$ 이상으로 방열특성이 우수할 수 있다.

- [93] 또한, 소정의 주파수, 일예로 1GHz, 5GHz, 10GHz, 15GHz, 20GHz, 25GHz, 28GHz, 30GHz, 또는 35GHz에서 비유전율이 4이하로 저유전 특성을 가지도록 구현될 수 있다. 저유전 특성을 갖는 방열시트는 신호가 송수신 되는 부품에 인접해서 사용되는 경우에 방열시트에 기인해서 송수신 되는 신호의 교란이나 신호의 감쇄를 방지하는 이점이 있다.

발명의 실시를 위한 형태

- [94] 하기의 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하기로 하지만, 하기 실시예가 본 발명의 범위를 제한하는 것은 아니며, 이는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것으로 해석되어야 할 것이다.

[95]

- [96] <실시예 1>

- [97] SBR(200°C MFR 5g/min, 중량평균분자량 90만) 100 중량부에 대해서 퍼옥사이드계 가교제인 비스(tert-부틸페녹시-2-이소프로필)벤젠 1중량부, 방열필러로 입경이 $90\mu\text{m}$ 인 그라파이트를 900 중량부, 용매로써 톨루엔을 혼합한 뒤 교반하여 점도가 약 2500cps인 시트 형성 조성물을 제조하였다. 제조된 시트 형성조성물을 기재 상에 콤팩터를 이용해 소정의 두께로 처리한 뒤, 100°C 에서 5분 간 건조시켜 두께가 약 $100\mu\text{m}$ 인 예비시트를 제조하였다. 이후 예비시트를 160°C 온도의 제1프레스를 이용해서 $3.1\text{kgf}/\text{mm}^2$ 의 압력을 가해 40분 간 열가교 반응을 유도했다. 이후 온도 50°C 인 제2프레스를 이용해서 $3.1\text{kgf}/\text{mm}^2$ 을 가한 상태에서 40분간 냉각공정을 수행하여 날 장의 최종 두께가 $60\mu\text{m}$ 이고, 방열필러의 함량이 90중량%인 방열시트를 제조하였다.

[98]

- [99] <실시예 2>

- [100] 실시예1과 동일한 방열필러를 사용하되, 매트릭스 형성성분으로

비스페놀A에폭시 성분(국도, YG-011) 100 중량부에 대하여 경화제 DICY를 3 중량부, 용매로써 메틸에틸케톤 200 중량부 혼합하여 시트 형성조성물을 제조하였고, 제조된 시트 형성조성물을 기재 상에 콤마코터를 이용해 소정의 두께로 처리한 뒤, 150°C로 30분 간 경화시킨 뒤 실시예1과 동일하게 냉각공정을 수행하여 최종두께가 60 μ m이고, 방열필러의 함량이 약 90중량%인 방열시트를 제조하였다.

[101]

[102] <실시예 3>

[103] 실시예1과 동일한 방열필러를 사용하되, 매트릭스 형성성분을 열가소성 폴리우레탄(TPU)으로 변경한 것을 제외하고 실시예1과 동일하게 실시하여 최종두께가 60 μ m이고, 방열필러의 함량이 약 90중량%인 방열시트를 제조하였다.

[104]

[105] <실험예1>

[106] 실시예 1 ~ 3 에 따른 방열시트를 동일 크기로 각각 100개씩 제조한 뒤 100개의 시편 중 크랙이나 깨짐이 발생한 시편의 개수, 시트가 수축되거나 표면에 기공이 발생한 시편의 개수를 카운팅하여 하기 표 1에 백분율로 나타내었다.

[107] [표1]

	실시예1	실시예2	실시예3
매트릭스 형성성분	고무계 성분(SBR)	에폭시 성분	폴리우레탄 성분
크랙/깨짐 발생 시트비율(%)	0	80	0
수축 및 기공 발생 시트비율(%)	2	0	53

[108] 표 1을 통해 확인할 수 있듯이, 매트릭스 형성성분으로 고무계 성분을 사용한 실시예1의 방열시트가 크랙이나 깨짐 발생이 없고, 수축 등의 형상 변화가 없으며, 표면품질이 우수한 것을 확인할 수 있다.

[109] <실시예4>

[110] SBR(200°C MFR 5g/min, 중량평균분자량 90만) 100 중량부에 대해서 퍼옥사이드계 가교제인 비스(tert-부틸페녹시-2-이소프로필)벤젠 1중량부, 방열필러로 입경이 32 μ m인 판상형 질화붕소를 1329 중량부를 투입하고, 용매로써 톨루엔을 혼합한 뒤 교반하여 점도가 약 2500cps인 시트 형성 조성물을 제조하였다. 제조된 시트 형성조성물을 기재 상에 콤마코터를 이용해 소정의 두께로 처리한 뒤, 100°C에서 5분 간 건조시켜 예비시트를 제조하였다. 이후 예비시트를 3장 적층시킨 뒤 160°C 온도의 제1프레스를 이용해서 3.1kgf/mm²의 압력을 가해 40분 간 열가교 반응을 유도했다. 이후 온도 50°C인 제2프레스를

이용해서 3.1kgf/mm²의 압력을 가한 상태에서 40분간 냉각공정을 수행하여 하기 표 2와 같은 열전도도가 33.7W/mK인 방열시트를 제조하였다.

[111]

[112] <실시예5>

[113] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 가교제의 종류를 헥사메틸렌디아소시아네이트로 변경하여 예비시트를 제조하였고, 가교 및 냉각 공정을 거쳐 하기 표 2와 같은 방열시트를 제조하였다.

[114]

[115] <비교예1>

[116] 실시예4와 동일하게 실시하여 제조하되, 가교제를 투입하지 않고 하기 표 2와 같은 방열시트를 제조하였다.

[117]

[118] <실험예2>

[119] 실시예 4 ~ 5 및 비교예1에 따른 방열시트에 대하여 하기의 물성을 평가한 뒤 그 결과를 표 2에 나타내었다. 구체적으로 방열시트 제조 직후의 두께 등 치수와 중량을 측정한 뒤, 하기 수학식 1에 따른 두께감소율을 계산했다. 또한, 제조된 방열시트를 40°C에서 50시간 방치 후 하기 수학식 2에 따라 두께 변화율을 계산했다.

[120] [수학식 1]

$$[121] \quad \text{두께 감소율(\%)} = \frac{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[122] [수학식 2]

$$[123] \quad \text{두께 변화율(\%)} = \frac{\text{방치 후 방열시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[124]

[125] [표2]

	실시예4	실시예5	비교예1
매트릭스형성성분	SBR	SBR	SBR
가교제 종류	퍼옥사이드계	이소시아네이트계	미사용
예비시트 두께(μm)	140	142	140
제조 직후방열시트 두께(μm)	82.0	101.0	82.0
두께감소율(%)	41.4	28.9	41.4
밀도(g/m^3)	1.81	1.71	1.81
50시간 방치후 방열시트 두께(μm)	82.2	109.3	138
두께 변화율(%)	0.3	8.2	68.3

[126] 표 2를 통해 확인할 수 있듯이 가교제를 퍼옥사이드계로 사용한 실시예4 및 이소시아네이트계를 사용한 실시예5의 경우 제조한 후 두께변화율이 10%이하로 비교예1 보다 우수한 것을 확인할 수 있다.

[127] <실시예 6 ~ 8>

[128] 실시예4와 동일하게 실시하여 제조하되, 냉각온도를 하기 표 3과 같이 변경하여 하기 표 3과 같은 방열시트를 제조하였다.

[129]

[130] <실험예3>

[131] 실시예4, 실시예6 ~ 8의 방열시트에 대해서 실험예2와 동일방법으로 두께변화율을 계산했다. 또한, 각 실시예 별로 총 1000개의 방열시트를 제조하는 중 제2프레스에 들러붙은 방열시트의 개수를 카운팅하여 하기 표 3에 나타내었다.

[132] [표3]

	실시예4	실시예6	실시예7	실시예8
매트릭스형성성분	SBR	SBR	SBR	SBR
가교제 종류	퍼옥사이드 계	퍼옥사이드 계	퍼옥사이드 계	퍼옥사이드 계
냉각온도(°C)	50	60	65	70
예비시트 두께(μm)	140	140	140	140
제조 직후방열시트 두께(μm)	82.0	82.0	82.0	82.0
두께감소율(%)	41.4	41.4	41.4	41.4
50시간 방치후 방열시트 두께(μm)	82.2	82.74	83.80	86.76
두께 변화율(%)	0.3	0.9	2.2	5.8
제2프레스에 들러붙은 방열시트 개수	0	3	26	100

[133] 표 3을 통해 확인할 수 있듯이, 냉각온도가 60°C를 초과하는 경우 제2프레스에 들러 붙는 방열시트의 개수가 증가하고, 두께 변화율도 커지는 것을 알 수 있다.

[134] <실시예9>

[135] 실시예4와 동일하게 실시하여 제조하되, 냉각공정을 수행하지 않고 방열시트를 제조하였다.

[136]

[137] <실험예3>

[138] 실시예4 및 실시예9에 따른 방열시트에 대해서 표면 SEM 사진을 촬영하여 그 결과를 도 3(실시예9) 및 도 4(실시예4)에 나타내었다.

[139] 도 3 및 도 4를 통해 알 수 있듯이, 냉각공정을 거치지 않은 실시예9의 방열시트에 대한 사진인 도 3은 표면이 매끄럽지 못하고 거친 반면에 냉각공정을 거친 실시예4의 방열시트는 표면품질이 우수한 것을 확인할 수 있다.

[140]

[141] <실시예 10 ~ 17>

[142] 실시예 4와 동일하게 실시하여 제조하되, 방열필러의 입경 및 방열필러 함량을 하기 표 4와 같이 변경하여 하기 표 4와 같은 방열시트를 제조하였다.

[143]

[144] <실험예4>

[145] 실시예4, 실시예 10 ~ 17에 따른 방열시트에 대해서 하기 물성을 평가하여 하기

표 4에 나타내었다.

[146] 1. 방열특성 평가

[147] 열전도도는 LFA를 이용해서 측정한 열확산도, DSC를 통해 측정된 비열, 및 방열시트의 밀도를 통해서 산출하였다.

[148] 또한, LED를 직경이 25mm인 원의 원주 상에 소정의 간격을 두고 이격해서 배치시킨 뒤, 상기 원의 중심에 온도계를 배치시키고 LED에 소정의 전압을 인가할 수 있도록 측정장비를 제조한 뒤, 상기 측정장비를 가로, 세로, 높이 각각 32cm×30cm×30cm인 아크릴 챔버 내부에 위치시키고, 아크릴 챔버 내부의 온도를 $25\pm0.2^{\circ}\text{C}$ 가 되도록 조절하였다. 이후 상기 측정장비의 LED 상에 방열시트를 올려놓은 뒤 LED에 소정의 입력전력을 인가하였고, 소정의 시간 경과 후 방열시트 상부에서 열화상 촬영 및 측정 장비 내 온도계의 온도를 측정하였다. 이후 열화상 촬영의 결과를 통해 LED에 대응되는 방열시트 부분의 평균온도를 산출하여 평균온도로 나타내었고, 측정 장비 내 온도계를 통해 산출된 온도를 T.C 값으로 각각 나타내었다.

[149] 또한, 방열성능을 평가하는 기준으로 방열시트가 없는 상태에서 측정 장비 LED에 동일한 입력전력을 인가하고, 동일 시간 경과 후 LED 상부에서 열화상 촬영 및 측정 장비 내 온도계의 온도를 측정하여 그 결과를 디폴트 값으로 하였고, 방열시트 없는 상태의 열화상 촬영된 평균온도는 53.8°C , T.C.는 66.3°C 이었다.

[150] 한편, 실시예 11의 경우 측정과정에서 시편의 깨짐이 심하여 측정이 불가능했다.

[151]

[152] 2. 표면품질

[153] 방열시트 표면에서 묻어나오는 방열필러의 양을 평가하기 위해서 제조된 방열시트와 동일크기의 점착시트를 방열시트 일면에 부착 후 떼어 내었다. 떼어 낸 점착시트를 가로, 세로 10등분하여 총 100개의 셀로 구획하고, 방열필러가 묻어나온 셀의 개수를 카운팅하였다.

[154]

[155] 3. 유연성 평가

[156] 각 실시예별 총 1000개의 방열시트에 대해서 곡률 20mm로 휘었을 때 크랙, 깨짐이 발생하는지를 관찰하여 발생한 시트의 개수를 카운팅하였다.

[157] [표4]

		실시예 4	실시예 10	실시예 11	실시예 12	실시예 13	실시예 14	실시예 15	실시예 16	실시예17
방열시트 두께(μm)		82	82	82	82	82	101	102	100	105
방 열 필 러	총함량 (wt%)	93	95	97	93	93	90	90	90	90
	A(μm /wt%)	32/93	32/95	32/97	40/93	45/93	32/60	32/67.5	32/72	32/51.4
	B(μm /wt%)	-	-	-	-	-	16/30	16/22.5	16/18	16/25.7
	C(μm /wt%)	-	-	-	-	-	4/0	4/0	4/0	4/12.6
	A:B:C 중량비	-	-	-	-	-	4:2:0	6:2:0	8:2:0	4.1:2.0:1
T.C($^{\circ}\text{C}$)		60.2 (-6.1)	60.0 (-6.3)	측정불 가	61.3 (-5.0)	62.5 (-3.8)	61.1 (-5.2)	60.6 (-5.7)	61.4 (-4.9)	60.2 (-6.1)
평균온도($^{\circ}\text{C}$)		45.7 (-8.1)	45.6 (-8.2)	측정불 가	46.5 (-7.3)	49.0 (-4.8)	46.5 (-7.3)	45.9 (-7.9)	47.1 (-6.7)	45.3 (-8.5)
열전도도(mK)		33.7	33.9	측정불 가	31.9	30.2	31.7	32.3	31.1	33.0
유연성		8	31	1000	15	30	0	0	4	0
표면품질		7	51	100	17	46	2	4	4	0

[158] ※ 표 4에서 T.C와 평균온도에서 "(-X)" 표시의 의미는 디폴트 값에 대비한 해당 실시예의 T.C와 평균온도 감소 정도를 나타낸다.)

[159]

[160] 표 4를 통해 확인할 수 있듯이, 실시예 11과 같이 방열필러 함량이 고충진되는 경우 방열시트 유연성이 저하되는 것을 확인할 수 있다. 또한, 평균입경이 다소 큰 실시예 13의 경우 표면품질이 좋지 않고, 이로 인해 방열특성이 실시예4에 대비해서 저하된 것을 확인할 수 있다.

[161]

[162] 이상에서 본 발명의 일 실시예에 대하여 설명하였으나, 본 발명의 사상은 본 명세서에 제시되는 실시예에 제한되지 아니하며, 본 발명의 사상을 이해하는 당업자는 동일한 사상의 범위 내에서, 구성요소의 부가, 변경, 삭제, 추가 등에 의해서 다른 실시예를 용이하게 제안할 수 있을 것이나, 이 또한 본 발명의 사상범위 내에 든다고 할 것이다.

청구범위

- [청구항 1] (1) 매트릭스 형성성분, 가교제 및 방열필러를 포함하는 예비시트를 제조하는 단계; 및
(2) 상기 예비시트에 포함된 매트릭스 형성성분을 가교시켜서 방열시트를 제조하는 단계;를 포함하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 2] 제1항에 있어서,
상기 예비시트 내 매트릭스 형성성분은 비가교 상태 또는 일부 가교 상태인 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 3] 제1항에 있어서, 상기 (2) 단계는
적어도 1장의 상기 예비시트에 대하여 열 및 압력을 가하면서 가교시키는 단계; 및
가교시킨 예비시트를 압력을 가하면서 냉각시키는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 4] 제3항에 있어서,
2 ~ 5장의 예비시트를 적층시킨 상태로 압력을 가하면서 가교시키는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 5] 제3항에 있어서,
상기 가교시키는 단계와 냉각시키는 단계는 서로 온도가 상이한 제1프레스 및 제2프레스를 통해 수행되는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 6] 제3항에 있어서,
상기 가교시키는 단계는 100 ~ 180°C 온도로 10 ~ 60분 동안 수행하며,
상기 냉각시키는 단계는 18 ~ 60°C 온도로 10 ~ 60분 동안 수행하는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 7] 제1항에 있어서,
상기 방열필러는 평균입경이 1 ~ 40 μm 이며, 방열시트 전체 중량 기준하여 85중량% 이상 구비되는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 8] 제1항에 있어서,
상기 방열필러는 입경이 1 ~ 5 μm 인 제1방열필러, 입경이 10 ~ 20 μm 인 제2방열필러 및 입경이 25 ~ 40 μm 인 제3방열필러를 1: 1.5 ~ 3 : 3.5 ~ 5의 중량비로 포함하는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 9] 제1항에 있어서,
상기 방열필러는 히드록시기, 알킬기, 아민기 및 아닐린기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 작용기로 표면개질된 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.
- [청구항 10] 제1항에 있어서,
상기 매트릭스 형성성분은 이소프렌 고무(IR), 부타디엔 고무(BR),

스티렌-부타디엔 고무(SBR), 에틸렌 프로필렌 디엔 모노머(EPDM) 고무, 아크릴 고무, 니트릴-부타디엔 고무(NBR) 및 실리콘 고무로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 고무계 성분을 포함하는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.

[청구항 11] 제1항에 있어서,
상기 가교제는 이소시아네이트계 및 퍼옥사이드계로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.

[청구항 12] 제1항에 있어서,
하기 수학적 식 1에 따라 계산한 두께 감소율이 20% 이상인 방열시트 제조방법:
[수학적 식 1]

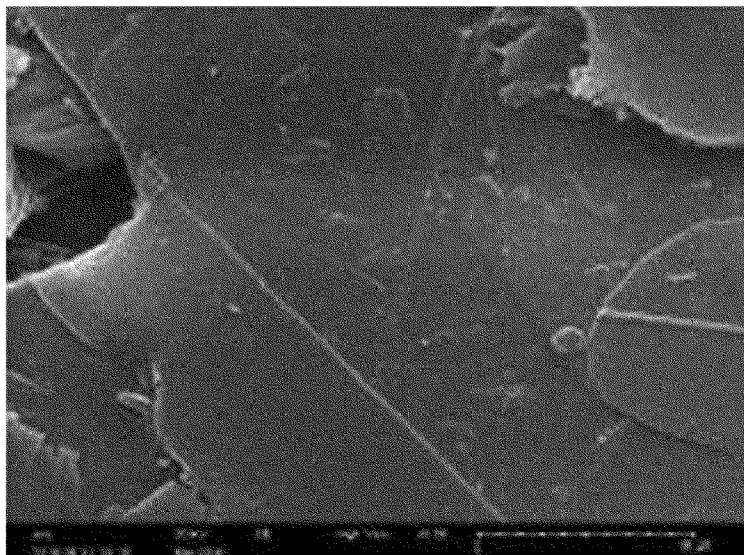
$$\text{두께 감소율(\%)} = \frac{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{예비시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[청구항 13] 제1항에 있어서,
상기 매트릭스 형성성분은 고무계 성분이며, 제조된 방열시트는 40°C에서 50시간 방치 후 하기 수학적 식 2에 따라 계산한 두께 변화율이 10% 미만인 방열시트 제조방법:
[수학적 식 2]

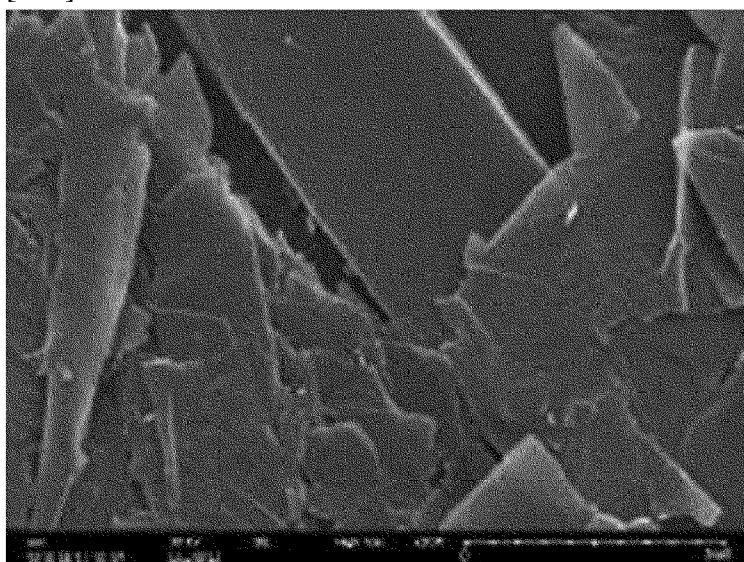
$$\text{두께 변화율(\%)} = \frac{\text{방치 후 방열시트 두께}(\mu\text{m}) - \text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})}{\text{방치 전 방열시트 두께}(\mu\text{m})} \times 100$$

[청구항 14] 제1항에 있어서,
상기 매트릭스 형성성분은 스티렌-부타디엔 고무(SBR)이며, 상기 가교제는 퍼옥사이드계인 것을 특징으로 하는 방열시트 제조방법.

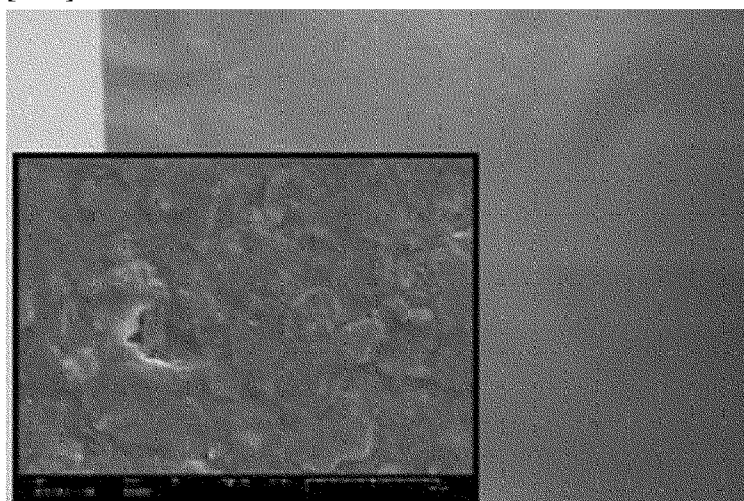
[도1]



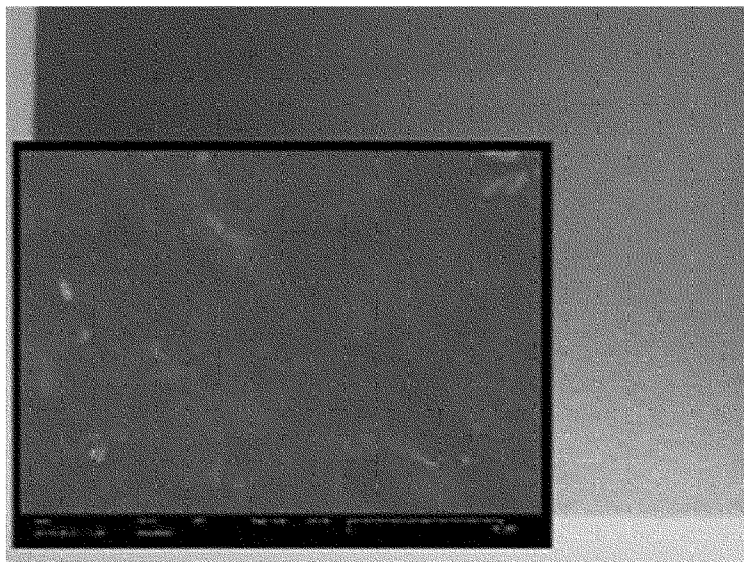
[도2]



[도3]



[도4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2020/000108

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05K 7/20(2006.01)i, C08K 9/04(2006.01)i, C08K 5/00(2006.01)i, C08K 5/14(2006.01)i, C08L 9/06(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)

H05K 7/20; C08J 5/00; C08K 3/04; C08L 101/00; C08L 15/00; C08L 63/00; H01L 23/36; H01L 23/373; C08K 9/04; C08K 5/00; C08K 5/14; C08L 9/06

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: matrix forming component, cross-linker, heat radiation filler, heat radiation sheet

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2012-054312 A (DAINIPPON PRINTING CO., LTD.) 15 March 2012 See paragraphs [0013]-[0031] and figure 1.	1,3-6,9-14
Y		2,7-8
Y	JP 2017-008321 A (TAKAGI CHEMICALS INC.) 12 January 2017 See paragraphs [0032]-[0076].	2,7-8
A	KR 10-2017-0042365 A (BANDO CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 18 April 2017 See paragraphs [0033]-[0055] and figure 3.	1-14
A	KR 10-1550083 B1 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 03 September 2015 See paragraphs [0036]-[0130].	1-14
A	JP 2015-098504 A (ADEKA CORP.) 28 May 2015 See paragraphs [0012]-[0034].	1-14



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

“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

22 APRIL 2020 (22.04.2020)

Date of mailing of the international search report

23 APRIL 2020 (23.04.2020)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex Daejeon Building 4, 189, Cheongsu-ro, Seo-gu,
Daejeon, 35208, Republic of Korea
Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2020/000108

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 2012-054312 A	15/03/2012	None	
JP 2017-008321 A	12/01/2017	JP 2014-080743 A1 JP 6034876 B2 US 2015-0259589 A1 US 2019-0309204 A1 WO 2014-080743 A1	05/01/2017 07/12/2016 17/09/2015 10/10/2019 30/05/2014
KR 10-2017-0042365 A	18/04/2017	CN 106575644 A CN 106575644 B JP 2016-031212 A1 JP 6068733 B2 KR 10-2019-0007530 A TW 201608012 A TW 201816072 A TW 201842152 A TW I621704 B TW I637050 B TW I674315 B US 10457845 B2 US 2017-0253783 A1 US 2019-0390098 A1 WO 2016-031212 A1	19/04/2017 10/12/2019 27/04/2017 25/01/2017 22/01/2019 01/03/2016 01/05/2018 01/12/2018 21/04/2018 01/10/2018 11/10/2019 29/10/2019 07/09/2017 26/12/2019 03/03/2016
KR 10-1550083 B1	03/09/2015	CN 102037798 A CN 103396642 A EP 2291066 A1 EP 2291066 B1 IL 209381 A IL 209381 B JP 2009-142290 A1 JP 4743344 B2 TW 201012912 A TW I507516 B US 10125237 B2 US 2011-0061852 A1 WO 2009-142290 A1	27/04/2011 20/11/2013 02/03/2011 01/08/2012 31/01/2011 26/02/2015 29/09/2011 10/08/2011 01/04/2010 11/11/2015 13/11/2018 17/03/2011 26/11/2009
JP 2015-098504 A	28/05/2015	None	

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

H05K 7/20(2006.01)i, C08K 9/04(2006.01)i, C08K 5/00(2006.01)i, C08K 5/14(2006.01)i, C08L 9/06(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

H05K 7/20; C08J 5/00; C08K 3/04; C08L 101/00; C08L 15/00; C08L 63/00; H01L 23/36; H01L 23/373; C08K 9/04; C08K 5/00; C08K 5/14; C08L 9/06

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: 매트릭스 형성성분(matrix forming component), 가교제(cross-linker), 방열필러(heat radiation filler), 방열시트(heat radiation sheet)

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 2012-054312 A (DAINIPPON PRINTING CO., LTD.) 2012.03.15 단락 [0013]-[0031] 및 도면 1 참조.	1,3-6,9-14
Y		2,7-8
Y	JP 2017-008321 A (TAKAGI CHEMICALS INC.) 2017.01.12 단락 [0032]-[0076] 참조.	2,7-8
A	KR 10-2017-0042365 A (반도 카가쿠 가부시키키가이샤) 2017.04.18 단락 [0033]-[0055] 및 도면 3 참조.	1-14
A	KR 10-1550083 B1 (히타치가세이가부시키키가이샤) 2015.09.03 단락 [0036]-[0130] 참조.	1-14
A	JP 2015-098504 A (ADEKA CORP.) 2015.05.28 단락 [0012]-[0034] 참조.	1-14

☐ 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

“D” 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌

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

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

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

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

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

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

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

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일

2020년 04월 22일 (22.04.2020)

국제조사보고서 발송일

2020년 04월 23일 (23.04.2020)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



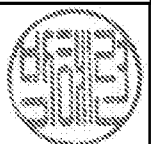
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

박혜련

전화번호 +82-42-481-3463



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 2012-054312 A	2012/03/15	없음	
JP 2017-008321 A	2017/01/12	JP 2014-080743 A1 JP 6034876 B2 US 2015-0259589 A1 US 2019-0309204 A1 WO 2014-080743 A1	2017/01/05 2016/12/07 2015/09/17 2019/10/10 2014/05/30
KR 10-2017-0042365 A	2017/04/18	CN 106575644 A CN 106575644 B JP 2016-031212 A1 JP 6068733 B2 KR 10-2019-0007530 A TW 201608012 A TW 201816072 A TW 201842152 A TW I621704 B TW I637050 B TW I674315 B US 10457845 B2 US 2017-0253783 A1 US 2019-0390098 A1 WO 2016-031212 A1	2017/04/19 2019/12/10 2017/04/27 2017/01/25 2019/01/22 2016/03/01 2018/05/01 2018/12/01 2018/04/21 2018/10/01 2019/10/11 2019/10/29 2017/09/07 2019/12/26 2016/03/03
KR 10-1550083 B1	2015/09/03	CN 102037798 A CN 103396642 A EP 2291066 A1 EP 2291066 B1 IL 209381 A IL 209381 B JP 2009-142290 A1 JP 4743344 B2 TW 201012912 A TW I507516 B US 10125237 B2 US 2011-0061852 A1 WO 2009-142290 A1	2011/04/27 2013/11/20 2011/03/02 2012/08/01 2011/01/31 2015/02/26 2011/09/29 2011/08/10 2010/04/01 2015/11/11 2018/11/13 2011/03/17 2009/11/26
JP 2015-098504 A	2015/05/28	없음	