

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2012년 11월 22일 (22.11.2012)



(10) 국제공개번호
WO 2012/157841 A1

- (51) 국제특허분류:
C08L 69/00 (2006.01) C08J 5/00 (2006.01)
C08L 23/02 (2006.01) C08L 101/12 (2006.01)
C08K 3/04 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2012/001662
- (22) 국제출원일: 2012년 3월 7일 (07.03.2012)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2011-0047283 2011년 5월 19일 (19.05.2011) KR
- (71) 출원인 (US을(를) 제외한 모든 지정국에 대하여): **한국화학연구원 (KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY)** [KR/KR]; 대전시 유성구 장동 100번지, 305-343 Daejeon (KR).
- (72) 발명자: **결**
- (75) 발명자/출원인 (US에 한하여): **이성구 (LEE, Sung Goo)** [KR/KR]; 대전시 유성구 어은동 한빛아파트 110동 1201호, 305-755 Daejeon (KR). **유영재 (YOO, Young Jae)** [KR/KR]; 서울시 송파구 오금동 44현대아파트 28동 1303호, 138-740 Seoul (KR). **원종찬 (WON, Jong Chan)** [KR/KR]; 대전시 서구 둔산1동 목련아파트 204동 302호, 302-771 Daejeon (KR). **김해운 (KIM, Hae Un)** [KR/KR]; 대전시 서구 갈마동 298-2 대호빌라

B동 102호, 302-170 Daejeon (KR). **전병국 (JEON, Byung Kuk)** [KR/KR]; 서울시 강동구 천호2동 288-5 삼익아파트 101동 1413호, 134-867 Seoul (KR).

(74) 대리인: **이원희 (LEE, Won Hee)**; 서울시 강남구 역삼동 642-16 성지하이츠 2차 8층, 135-080 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[다음 쪽 계속]

(54) Title: POLYMER COMPOSITION HAVING GOOD SUPERIOR THERMAL CONDUCTIVITY, AND A METHOD FOR PREPARING SAME

(54) 발명의 명칭 : 열전도성이 우수한 고분자 조성물 및 이의 제조방법

[Fig. 2]



AA ... Resin 1 BB ... Filler CC ... Resin 2

(57) Abstract: The present invention relates to a polymer composition having good superior thermal conductivity, to a mold manufactured from the polymer composition, and to a method for manufacturing the composition and the mold. Particularly, the present invention relates to a polymer composition comprising: 10 to 80 volume % of a polycarbonate-based resin; 10 to 80 volume % of a polyolefin-based resin; and 5 to 80 volume % of a thermo thermo-conductive filler, and a mold manufactured from the polymer composition. Also provided is a method for preparing the polymer composition, comprising the steps of: mixing 10 to 80 volume % of a polycarbonate-based resin, 10 to 80 volume % of a polyolefin-based resin, and 5 to 80 volume % of a thermo thermo-conductive filler; and extruding the thus-obtained mixture. According to the present invention, the thermal conductivity of the polymer composition can be largely significantly increased by effectively forming a network between fillers through controlling the morphology of the polymers in the composition even by when using only one kind of filler. The mold manufactured by using the polymer composition of the present invention can be usefully applied as a partin products such as a heat sink for electronic instruments.

(57) 요약서: 본 발명은 열전도성이 우수한 고분자 조성물, 이로부터 제조되는 성형품, 및 이들의 제조방법에 관한 것으로,

[다음 쪽 계속]

**공개:**

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

— 청구범위 보정 기한 만료 전의 공개이며, 보정서를 접수하는 경우 그에 관하여 별도 공개함 (규칙 48.2(h))

구체적으로 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물 및 이로부터 제조되는 성형품을 제공하고, 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계; 및 상기 혼합물을 압출하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다. 본 발명에 따르면, 1 종의 필러를 사용하면서도 조성물 내 고분자들의 모폴로지를 제어함으로써 필러들 간 네트워크를 효과적으로 형성함으로써 열전도율이 크게 향상되는 효과가 있어, 본 발명에 다른 고분자 조성물로부터 제조되는 성형품은 전자기기의 방열판과 같은 부품으로 유용하게 적용될 수 있다.

명세서

발명의 명칭: 열전도성이 우수한 고분자 조성물 및 이의 제조방법 기술분야

[1] 본 발명은 열전도성이 우수한 고분자 조성물, 이로부터 제조되는 성형품, 및 이들의 제조방법에 관한 것이다.

[2]

배경기술

[3] 최근, 전자기기의 고성능화, 소형화, 경량화 등에 따라 반도체 패키지의 고밀도 패키징, LSI의 고집적화 및 고속화 등이 요구되고 있다. 이에 따라 각종 전자부품에서 발생하는 열이 증대되어, 이와 같이 전자부품으로부터 발생하는 열을 효과적으로 외부로 방출시키는 대책에 매우 중요한 과제로 인식되고 있다. 이러한 과제를 해결하기 위한 방열부재로서, 금속, 세라믹, 고분자 조성물 등의 방열재료를 포함하는 열전도성 성형체가 프린트 배선기판, 반도체 패키징, LED 램프 하우징용 히트 파이프, 방열판, 및 열 확산판 등에 사용되고 있다.

[4]

[5] 이 중, 금속은 발명하는 부품을 가진 전자기기의 방열판과 같은 재료로 가장 많이 사용되고 있다. 그 이유는 금속이 가진 높은 열전도율 때문이다. 금속은 다른 재료들보다 열을 빠르게 주위로 확산시켜, 열에 민감한 전자부품을 보호할 수 있다. 또한 금속은 높은 기계적 강도를 가지고 있어 방열용 재료로 적합한 장점이 있다. 그러나, 이러한 금속은 높은 밀도로 인하여 경량화가 어렵고, 가공성이 떨어지며, 제조비용이 높은 단점이 있다.

[6]

[7] 이와 같은 금속의 단점을 극복하기 위하여, 금속을 대신할 수 있는 열전도성 고분자 조성물에 대한 연구가 계속되고 있다. 열전도성 고분자 조성물에 대한 연구는 주로 고분자와 열전도성 필러의 복합화 기술을 통해 이루어져 왔으며, 현재까지는 고분자와 열전도성 필러의 복합화 기술 외에는 고분자 재료의 열전도성을 높이기 위한 획기적인 기술은 미비한 상태이다. 일반적으로 고분자소재는 열전도도가 0.1 내지 0.5 W/(m·K)으로 열저항체이며, 다량의 열전도성 필러를 포함하는 복합재료인 경우에도 일반적으로 10 W/(m·K) 정도의 열전도도를 갖게 되지만, 이와 같은 열전도도를 갖는 복합재료의 경우는 매우 높은 함량의 열전도성 필러를 포함하기 때문에 급격한 점도 증가에 따라 가공성이 떨어지고, 기계적 물성도 크게 감소하게 된다. 최근에는 전자기기가 고집적화, 고성능화됨에 따라, 전자기기 내에서 점점 더 많은 열이 발생하고 있고, 또한 전자기기가 박막화, 소형화되면서 발생하는 열을 주위로 빠르게 확산시키는 것이 더욱 어려워지고 있다. 그로 인해, 전자기기에서 발생하는 국부적 고온 상태가 전자기기의 오작동 또는 발화 등을 초래하는 문제점이 크게

부각되고 있다. 따라서, 높은 열전도도와 우수한 가공성을 갖는 고분자소재에 대한 수요가 증가되고 있는 현실이다.

[8]

[9] 하지만, 기존에 개발된 열전도성 고분자 조성물들은 열전도도가 충분히 높지 않고, 열전도도를 만족하는 재료의 경우에는 가공성이 불량하여, 기존의 압출공정이나 사출공정을 통해 성형이 불가하여 최근의 문제점들을 해결하기에 부족하다.

[10]

[11] 이에 적절한 양의 필러를 포함하면서도 열전도도 및 전기전도도가 우수한 고분자 조성물을 제조하기 위한 연구가 진행되고 있다. 예를 들어, 대한민국 공개특허 제10-2010-0075227호는 열전도성이 우수한 고분자 수지 조성물에 관한 발명으로, 서로 다른 형태 및 크기의 필러를 사용하여 필러간 네트워크를 효과적으로 구성함으로써 많은 양의 필러를 사용하지 않고도 열전도성이 우수하고 기계적 강도가 우수한 고분자 수지 조성물을 기재하고 있다. 상기 발명은 필러들간의 접촉면적을 향상시키는 방법으로 열전도도를 향상시키는 발명이다. 또한, 미국 등록특허 제6,899,160호 또한 2 종 이상의 필러를 사용하여 열전도성을 향상시킨 열전도성 물질에 관한 발명으로, 상기 대한민국 공개특허와 유사하게 서로 다른 2 종의 열전도성 필러를 사용함으로써 필러간의 접촉율을 향상시키고, 매트릭스의 두께를 줄여줌으로써 열전도율을 향상시키고 있다. 나아가, 일본 공개특허 특개2009-292889호는 열전도도를 향상시키기 위하여 필러를 충분히 포함하되, 이에 따른 기계적 특성의 저하를 방지하기 위하여 폴리아미드 섬유를 더 포함하고 있는 발명이다.

[12]

[13] 그러나, 상기의 방법들은 대부분 복합체의 열전도가 $10 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 이하로 방열용 재료로 사용하기에는 열전도도가 낮아서 용도가 제한적인 문제점들이 있다. 이에 본 발명의 발명자들은 지금까지와는 전혀 다른 방법으로 고분자 조성물의 열전도도를 향상시키고자 연구하던 중 서로 다른 2종의 고분자 및 필러를 혼합하고, 이들의 모폴로지(morphology)를 제어함으로써 고분자 조성물의 열전도를 향상시키는 본 발명을 완성하였다.

[14]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

[15] 본 발명의 목적은 열전도도가 우수하고, 기계적 강도가 우수한 고분자 조성물 및 이로부터 제조되는 성형품을 제공하는데 있다. 본 발명의 다른 목적은 상기 고분자 조성물 및 성형품의 제조방법을 제공하는데 있다.

[16]

과제 해결 수단

[17] 이를 위하여 본 발명은 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열 및 전기 전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물 및 이로부터 제조되는 성형품을 제공하고, 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계; 및 상기 혼합물을 압출하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.

[18]

발명의 효과

[19] 본 발명에 따르면, 1 종의 필러를 사용하면서도 조성물 내 2종이상의 고분자들의 모폴로지를 제어함으로써 필러들 간 네트워크를 효과적으로 형성하도록 하여 열전도율이 크게 향상되는 효과가 있다. 이에 따라, 본 발명에 다른 고분자 조성물로부터 제조되는 성형품은 전자기기의 방열판 등과 같은 부품으로 유용하게 적용될 수 있다.

[20]

도면의 간단한 설명

[21] 도 1은 기존이 필러를 포함하는 고분자 조성물을 확대하여 나타낸 모식도이고,

[22] 도 2는 본 발명의 일 구체예에 따른 고분자 조성물을 확대하여 나타낸 모식도이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[23] 본 발명은 고분자 조성물의 열전도도 향상에 있어서, 공지의 발명들과는 전혀 다른 방법으로 문제를 해결하고 있다. 즉, 공지의 발명들은 1) 필러를 충분히 포함하되 기계적 특성이 저하되는 것을 방지하는 수단을 더 포함하는 방법, 2) 서로 다른 종류 또는 형태의 필러를 포함하여 필러들 간의 접촉율을 향상시키는 방법 등으로 열전도도를 향상시키고 있으나, 본 발명은 2 종의 서로 섞이지 않는 고분자를 혼합하여 두 개의 상을 형성하도록 모폴로지를 제어하되, 두 개의 상 중 하나는 필러에 대한 친화도가 높은 상이 되도록 함으로써, 필러가 하나의 상 속에 주로 존재하게 하는 방법으로 필러들의 네트워크를 효과적으로 구성하는 방법으로 열전도도를 향상시킨다.

[24]

[25] 이하 본 발명을 상세히 설명한다.

[26]

[27] 본 발명은

[28] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물을 제공한다.

[29]

[30] 폴리카보네이트계 수지와 폴리올레핀계 수지는 서로 상용성이 없어, 이들을

혼합할 경우 2 개의 상을 형성하며, 폴리카보네이트계 수지는 폴리오레핀계 수지에 비하여 필러에 대한 친화도가 높아 필러가 특정 상인 폴리카보네이트계 수지 상에 현저히 많이 존재할 수 있도록 한다. 또한 폴리카보네이트계 수지는 기계적 강도가 우수하고, 내열성이 높으며, 투명하고, 성형성이 우수하여 성형품을 제조하기에 우수한 물성을 가진 장점이 있다. 폴리오레핀계 수지 또한 내열성 및 투명도가 우수하고 가벼운 장점이 있다.

[31]

[32] 본 발명의 고분자 조성물에는 폴리카보네이트계 수지가 10 내지 80 부피%로 포함되는 것이 바람직하다. 고분자 조성물에 폴리카보네이트계 수지가 상기 범위를 벗어난 양으로 포함되는 경우에는 2 개의 서로 다른 상이 충분히 형성되지 않아 원하는 모폴로지(morphology)의 제어가 어려워지는 문제점이 있다. 한편, 본 발명의 고분자 조성물에는 폴리카보네이트계 수지가 20 내지 70 부피%로 포함되는 것이 더욱 바람직하다. 왜냐하면, 폴리카보네이트계 수지의 함량이 20 내지 70 부피%로 포함되는 경우, 높은 열전도도 뿐만 아니라, 우수한 가공성, 열전도성, 기계적 물성, 열안정성 등 실제 사용환경에 적합한 일정 수준 이상의 물성값들을 확보할 수 있기 때문이다.

[33]

[34] 본 발명의 고분자 조성물에 포함되는 폴리카보네이트계 수지는 비스페놀-A를 기반으로 하는 폴리카보네이트계 수지인 것이 바람직하나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[35]

[36] 본 발명의 고분자 조성물에는 폴리오레핀계 수지가 10 내지 80 부피%로 포함되는 것이 바람직하다. 고분자 조성물에 폴리오레핀계 수지가 상기 범위를 벗어난 양으로 포함되는 경우에는 2 개의 서로 다른 상이 충분히 형성되지 않아 원하는 모폴로지(morphology)의 제어가 어려워지는 문제점이 있다. 한편, 본 발명의 고분자 조성물에는 폴리오레핀계 수지가 20 내지 70 부피%로 포함되는 것이 더욱 바람직하다. 왜냐하면, 폴리오레핀계 수지의 함량이 20 내지 70 부피%로 포함되는 경우, 높은 열전도도 뿐만 아니라, 우수한 가공성, 열전도성, 기계적 물성, 열안정성 등 실제 사용환경에 적합한 일정 수준 이상의 물성값들을 확보할 수 있기 때문이다.

[37]

[38] 본 발명의 고분자 조성물에 포함되는 폴리오레핀계 수지는 에틸렌옥텐 고무(EOR), 에틸렌프로필렌 고무(EPR), 에틸렌-프로필렌-디엔 고무(EPDM), 선형저밀도폴리에틸렌(LLDPE), 저밀도폴리에틸렌(LDPE), 고밀도폴리에틸렌(HDPE), 및 폴리프로필렌(PP)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것이 바람직하나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[39]

[40] 본 발명에 따른 고분자 조성물에는 열 및 전기 전도성 필러가 5 내지 80

부피%로 포함되는 것이 바람직하다. 필러가 5 부피% 미만으로 포함될 경우에는 조성물의 열 및 전기 전도도가 현저히 떨어지는 문제점이 있고, 80 부피%를 초과하여 포함되는 경우에는 조성물의 점도가 지나치게 높아져 성형성이 현저히 떨어지는 문제가 있고, 이로부터 제조되는 성형품의 기계적 강도 또한 현저히 떨어지는 문제가 있다. 한편, 본 발명의 고분자 조성물에는 열 및 전기 전도성 필러가 10 내지 60 부피%로 포함되는 것이 더욱 바람직하다.

[41]

[42] 본 발명의 따른 고분자 조성물에 포함되는 열 전도성 필러는 카본계 필러인 것이 바람직하고, 그래파이트(graphite)인 것이 더욱 바람직하나, 열전도도가 높은 필러라면 이에 한정되는 것은 아니다. 그래파이트는 열전도도가 400 W/(m·K) 이상으로 매우 높은 열전도를 보이므로 본 발명의 고분자 조성물에 필러로 사용되기에 적절하다.

[43]

[44] 또한, 본 발명은 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열 및 전기 전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물로부터 제조된 성형품을 제공한다.

[45]

[46] 상기한 바와 같은 조성을 이루고 있는 고분자 조성물을 통상의 압출기, 브라벤더 플라스틱코더(Brabender Plasticorder), 반바리 믹서(Banbury Mixer), 니더(Kneader) 또는 롤밀(Roll Mill) 등 기존의 성형장치들을 이용하여 250 내지 350°C에서 10 ~ 500 rpm으로 용융혼합하여 성형 제조 할 수 있다.

[47]

[48] 또한, 본 발명에 따른 고분자 조성물은 성형성이 우수한 고분자를 포함하고, 성형성을 저해하지 않는 범위의 필러를 포함하기 때문에 이를 사출성형 등의 방법으로 성형함에 있어서 작업성이 매우 우수한 장점이 있다. 또한, 이에 의하여 제조된 성형품은 열전도도 뿐만 아니라, 기계적 강도도 매우 우수한 장점이 있다. 본 발명에 따른 성형품은 우수한 열전도도로 인하여, 전자기기에서 발생하는 열을 방출시키기 위한 부품에 적용될 수 있으나, 반드시 이에 한정되는 것은 아니다.

[49]

[50] 나아가, 본 발명은

[51] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계(단계 1); 및 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2)를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법을 제공한다.

[52]

[53] 이하 본 발명품의 제조방법을 단계별로 상세히 설명한다.

[54]

[55] 본 발명의 제조방법 중 단계 1은 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열전도성 필러를 혼합하는 단계이다. 상기 단계에서, 입자 형태의 폴리카보네이트계 수지, 폴리올레핀계 수지 및 열전도성 필러를 상온에서 균일하게 혼합한다.

[56]

[57] 이때, 폴리카보네이트계 수지 및 폴리올레핀계 수지의 조성이 상기 범위를 벗어나는 경우에는 이후 열간압출에서 2 개의 서로 다른 상이 충분히 형성되지 않아 원하는 모폴로지(morphology)의 제어가 어려워지는 문제점이 있다. 또한, 열 및 전기 전도성 필러의 양이 5 부피% 미만으로 포함될 경우에는 조성물의 열 및 전기 전도도가 현저히 떨어지는 문제점이 있고, 80 부피%를 초과하여 포함되는 경우에는 조성물의 점도가 지나치게 높아져 성형성이 현저히 떨어지는 문제가 있고, 이로부터 제조되는 성형품의 기계적 강도 또한 현저히 떨어지는 문제가 있다.

[58]

[59] 본 발명의 제조방법 중 단계 2는 균일하게 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계이다. 혼합물의 열간압출은 예를 들어 이중압출기(twin-screw extruder)와 같은 장치를 이용하여 공지의 방법에 따라 수행될 수 있다. 폴리카보네이트계 수지와 폴리올레핀계 수지는 서로 상용성이 없어, 혼합과정에서 2 개의 서로 다른 상을 형성하게 되고, 이 중 폴리카보네이트 수지가 필러에 대한 친화도가 높기 때문에 필러는 폴리카보네이트 수지가 형성하는 상에 현저히 많이 존재하게 된다. 한편, 상기 수지 및 필러의 혼합은 입자들의 상온 혼합 및 용융공정에 의하여 진행되는 바, 용매를 전혀 사용하지 않기 때문에 환경친화적인 공정이며, 필러의 개질이 필요없고, 간단한 방법으로 혼합이 가능하여 공정을 단순화시킬 수 있고, 생산성이 향상되는 장점이 있다.

[60]

[61] 본 발명의 제조방법에서 사용되는 폴리카보네이트계 수지는 비스페놀-A를 기반으로 하는 폴리카보네이트계 수지인 것이 바람직하나, 이에 한정되는 것은 아니다. 또한, 동일 단계에서 사용되는 폴리올레핀계 수지는 에틸렌옥텐 고무(EOR), 에틸렌프로필렌 고무(EPR), 에틸렌-프로필렌-디엔 고무(EPDM), 선형저밀도폴리에틸렌(LLDPE), 저밀도폴리에틸렌(LDPE), 고밀도폴리에틸렌(HDPE), 및 폴리프로필렌(PP)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것이 바람직하나, 이에 한정되는 것은 아니다. 나아가, 동일 단계에서 사용되는 열 전도성 필러는 카본계 필러인 것이 바람직하고, 그래파이트인 것이 더욱 바람직하나, 열전도도가 높은 필러라면 이에 한정되는 것은 아니다. 그래파이트는 열전도도가 400 W/(m·K) 이상으로 매우 높은 열전도도를 보이므로 본 발명의 고분자 조성물에 필러로 사용되기에 적절하다.

[62]

[63] 한편, 본 발명의 제조 단계에서 혼합되는 폴리카보네이트계 수지,

폴리올레핀계 수지, 및 열 및 전기 전도성 필러의 함량은 각각 20 내지 70 부피%, 20 내지 70 부피%, 및 10 내지 60 부피%인 것이 더욱 바람직하다. 왜냐하면 상기 수지함량에서 높은 열전도도 뿐만 아니라, 우수한 가공성, 열전도성, 기계적 물성, 열안정성 등 실제 사용환경에 적합한 일정 수준 이상의 물성값들을 확보할 수 있기 때문이다. 또한 필러가 5 부피% 미만으로 포함될 경우에는 조성물의 열 및 전기 전도도가 현저히 떨어지는 문제점이 있고, 80 부피%를 초과하여 포함되는 경우에는 조성물의 점도가 지나치게 높아져 성형성이 현저히 떨어지는 문제가 있고, 이로부터 제조되는 성형품의 기계적 강도 또한 현저히 떨어지는 문제가 있기 때문이다.

[64]

[65] 본 발명의 압출공정은 250 내지 350 °C의 온도에서 수행되는 것이 바람직하다. 압출시의 온도가 250 °C 미만인 경우 수지와 필러간의 혼합이 충분히 이루어지지 않는 문제점이 있고, 온도가 350 °C를 초과하는 경우 수지의 열분해에 따라 물성이 저하되는 문제점이 있다.

[66]

[67] 나아가 본 발명은

[68] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계(단계 A);

[69] 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 B); 및

[70] 상기 압출물을 사출성형하는 단계(단계 C)를 포함하는 고분자 조성물을 포함하는 성형품의 제조방법을 제공한다.

[71]

[72] 상기 고분자 조성물의 제조방법에 따라 제조된 고분자 조성물을 상기 단계 C에 기재된 바와 같이 사출성형함으로써 원하는 성형품을 제조할 수 있다. 고분자 조성물을 제조하는 단계 A 및 B는 상기 고분자 제조방법의 단계 1 및 단계 2와 동일하여 설명을 생략한다. 본 발명의 제조방법 중 단계 C의 사출성형은 사출 성형기(injection molding machine)와 같은 장치를 이용하여 공지의 방법으로 수행될 수 있다.

[73]

[74] 본 발명의 제조방법으로 제조된 고분자 조성물을 포함하는 성형품은 기계적 강도가 우수하면서도 열전도도가 우수하여 전자기기의 열을 방출시키는 용도로 사용되며, 전기전도성을 가져야 하는 부품에 유용하게 적용될 수 있다.

[75]

[76] 이하 본 발명을 실시예에 의하여 더욱 구체적으로 설명한다. 단, 하기 실시예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것일 뿐, 하기 실시예에 의하여 본 발명의 범위가 한정되는 것은 아니다.

[77]

발명의 실시를 위한 형태

[78] <실시예 1>

[79] 고분자 조성물의 제조 1

[80] 폴리카보네이트계 수지로 삼양사의 3022 PJ17 부피%, 폴리올레핀계 수지로 에틸렌/옥텐 공중합체인 Dow Chemical 사의 Engage 8842 26 부피%, 전도성 필러로 50 내지 200 μm 의 평균 크기를 갖는 플레이크 형태의 Showa Denko 사의 그라파이트 57 부피%를 균일하게 교반하여 혼합하였다. 그 후 상기 혼합물을 이축압출기를 이용하여 압출함으로써 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다. 이때, 압출온도는 290 $^{\circ}\text{C}$ 였다.

[81]

[82] <실시예 2>

[83] 고분자 조성물의 제조 2

[84] 폴리카보네이트계 수지를 20 부피%, 폴리올레핀계 수지를 30 부피%, 및 필러를 50 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[85]

[86] <실시예 3>

[87] 고분자 조성물의 제조 3

[88] 폴리카보네이트계 수지를 24 부피%, 폴리올레핀계 수지를 36 부피%, 및 필러를 40 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[89]

[90] <비교예 1>

[91] 고분자 조성물의 제조 4

[92] 폴리카보네이트계 수지로 삼양사의 3022 PJ55 부피%, 및 전도성 필러로 50 내지 200 μm 의 평균 크기를 갖는 플레이크 형태의 Showa Denko 사의 그라파이트 45 부피%를 교반하여 혼합하였다. 그 후 상기 혼합물을 이축압출기를 이용하여 압출함으로써 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다. 이때, 압출온도는 290 $^{\circ}\text{C}$ 였다.

[93]

[94] <비교예 2>

[95] 고분자 조성물의 제조 5

[96] 폴리카보네이트계 수지를 65 부피%, 및 필러를 35 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[97]

[98] <비교예 3>

[99] 고분자 조성물의 제조 6

[100] 폴리카보네이트계 수지를 73 부피%, 및 필러를 27 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[101]

[102] <비교예 4>

[103] 고분자 조성물의 제조 7

[104] 폴리올레핀계 수지로 에틸렌/옥텐 공중합체인 Dow Chemical 사의 Engage 8842 43 부피%, 및 전도성 필러로 50 내지 200 μm 의 평균 크기를 갖는 플레이크 형태의 Showa Denko 사의 그라파이트 57 부피%를 교반하여 혼합하였다. 그 후 상기 혼합물을 이축압출기를 이용하여 압출함으로써 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다. 이때, 압출온도는 290 °C였다.

[105]

[106] <비교예 5>

[107] 고분자 조성물의 제조 8

[108] 폴리올레핀계 수지를 50 부피%, 및 필러를 50 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 비교예 4와 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[109]

[110] <비교예 6>

[111] 고분자 조성물의 제조 9

[112] 폴리올레핀계 수지를 60 부피%, 및 필러를 40 부피%로 혼합한 것을 제외하고는 상기 비교예 4와 동일한 방법으로 고분자 조성물의 펠렛을 제조하였다.

[113]

[114] 상기 실시예 1 내지 실시예 3, 및 비교예 1 내지 비교예 6의 각 성분 조성을 하기 표 1에 정리하였다.

[115]

[116] 표 1

[Table 1]

	폴리카보네이트계 수지(부피%)	폴리올레핀계 수지(부피%)	필러(부피%)
실시예 1	17	26	57
실시예 2	20	30	50
실시예 3	24	36	40
비교예 1	55	-	45
비교예 2	65	-	35
비교예 3	73	-	27
비교예 4	-	43	57
비교예 5	-	50	50
비교예 6	-	60	40

[117] <실험예 1>

[118] 고분자 조성물의 열전도도 측정

[119] 본 발명에 따라 제조된 고분자 조성물의 열전도도를 측정하기 위하여 하기와 같은 실험을 수행하였다.

[120]

[121] 열전도도(κ)는 하기 식 1에 의하여 계산되었다.

[122]

[123] <식 1>

[124] 열전도도(κ) = 열확산도(α) × 비열(C_p) × 밀도(ρ)

[125]

[126] 본 발명의 실시예 1 내지 실시예 3 및 비교예 1 내지 비교예 3에 의하여 제조된 고분자 조성물 펠렛에 대하여 Netzsch LFA 477 측정기(Netzsch 사)를 이용하여 25 °C의 온도에서 ASTM E1461에 따라 열확산도를 측정하였고, MDSC 측정기(TA instrument 사)를 이용하여 ASTM E1952에 따라 비열을 측정하였으며, Gas Pycnometer(Protech 사)를 이용하여 ASTM D6226에 따라 밀도를 측정하였다. 각 고분자 조성물 펠렛의 측정된 열확산도, 비열, 및 밀도로부터 상기 식 1을 이용하여 열전도를 계산하였고 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

[127]

[128] 표 2

[Table 2]

	열 확산도(cm^2/s)	비열($\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$)	밀도(g/cm^3)	열전도도($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)
실시예 1	0.178	0.752	1.973	26.4
실시예 2	0.125	0.911	1.898	21.5
실시예 3	0.048	1.006	1.799	8.7
비교예 1	0.03962	0.811	1.863	5.986
비교예 2	0.03554	0.8916	1.745	5.529
비교예 3	0.01312	0.900	1.622	1.915
비교예 4	0.00363	1.961	1.0553	0.751
비교예 5	0.00346	2.06	0.9956	0.710
비교예 6	0.00289	2.443	0.9751	0.688

[129] 상기 표 2에서 알 수 있는 바와 같이 본 발명에 따른 고분자 조성물은 열전도도가 매우 우수하다. 특히 펠러의 함량이 동일한 실시예 2와 비교예 5를 비교하면 실시예 2의 고분자 조성물의 열전도도가 30 배 이상 높은 것을 알 수 있다.

[130]

[131] <실험예 2>

[132] 고분자 조성물의 충격강도 측정

[133] 본 발명에 따라 제조된 고분자 조성물의 충격강도를 측정하기 위하여 하기와 같은 실험을 수행하였다.

[134]

[135] 본 발명의 실시예 1 내지 실시예 3 및 비교예 1 내지 비교예 3에 의하여 제조된 고분자 조성물 펠렛에 대하여 Izod impact strength tester(Izod 타입 충격강도 시험기)를 이용하여 ASTM D256에 따라 충격강도를 측정하였고 그 결과를 하기 표 3에 나타내었다.

[136]

[137] 표 3

[Table 3]

	충격강도((kgf·cm)/cm)
실시예 1	1.8
실시예 2	1.8
실시예 3	1.9
비교예 1	1.8
비교예 2	2.0
비교예 3	2.6
비교예 4	-
비교예 5	-
비교예 6	-

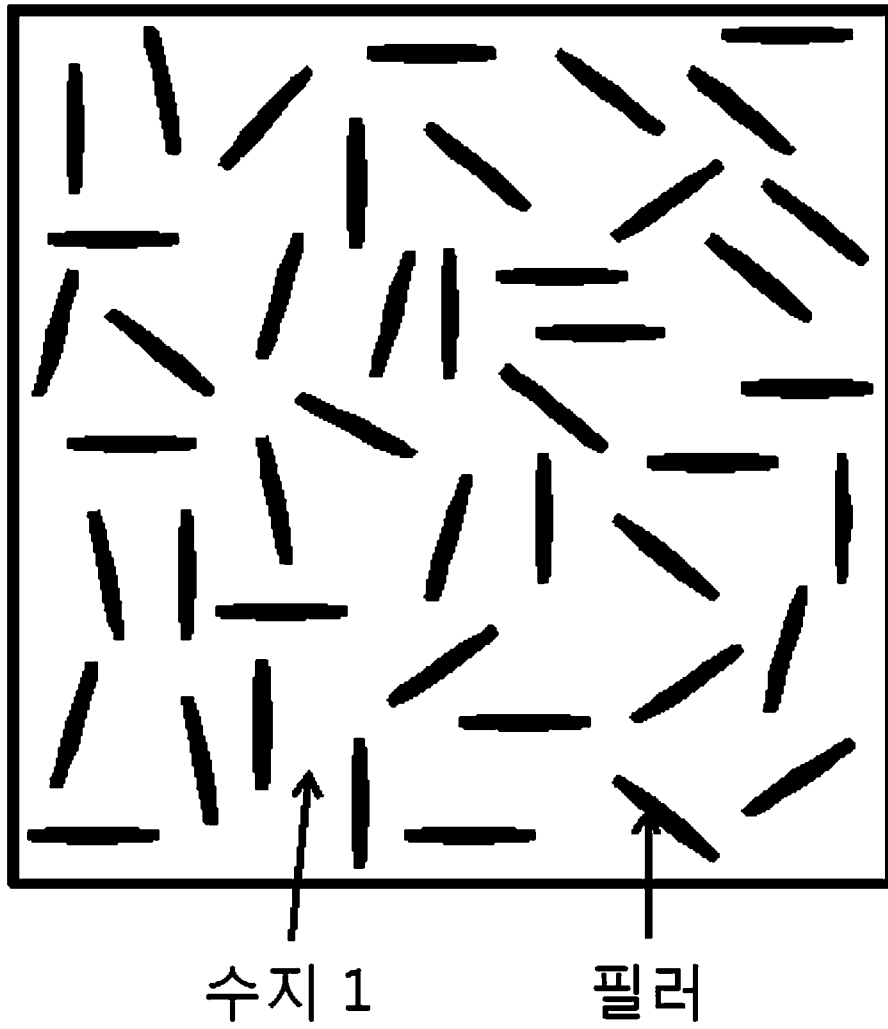
- [138] 상기 표 3에서 알 수 있는 바와 같이 본 발명에 따른 고분자 조성물은 매우 우수한 열전도도를 가지고 있으면서도, 충격강도의 저하가 매우 적음을 알 수 있다. 특히 필러의 함량이 유사한 실시예 1과 비교예 1을 비교하면 실시예 1의 고분자 조성물의 열전도도가 4 배 이상 높으며, 충격강도는 유사한 것을 알 수 있다. 비교예 4-6의 경우에는 사출성형이 불가하여 충격강도 측정이 불가하였다.

청구범위

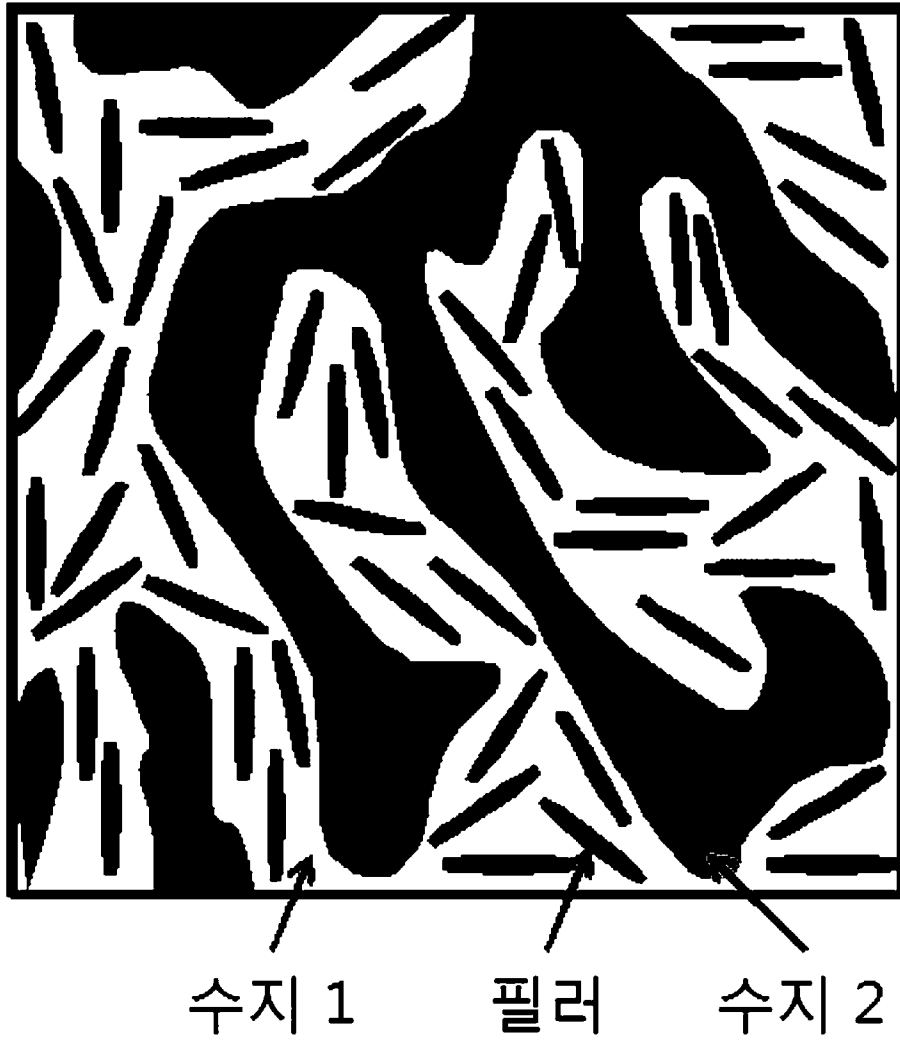
- [청구항 1] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물.
- [청구항 2] 제1항에 있어서 상기 폴리카보네이트계 수지는 20 내지 70 부피%, 폴리올레핀계 수지는 20 내지 70 부피%, 및 열 전도성 필러는 10 내지 60 부피%로 포함되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.
- [청구항 3] 제1항에 있어서, 상기 폴리카보네이트계 수지는 비스페놀-A를 기반으로 하는 폴리카보네이트계 수지인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.
- [청구항 4] 제1항에 있어서, 상기 폴리올레핀계 수지는 에틸렌옥텐 고무(EOR), 에틸렌프로필렌 고무(EPR), 에틸렌-프로필렌-디엔 고무(EPDM), 선형저밀도폴리에틸렌(LLDPE), 저밀도폴리에틸렌(LDPE), 고밀도폴리에틸렌(HDPE), 및 폴리프로필렌(PP)으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.
- [청구항 5] 제1항에 있어서, 상기 필러는 카본계 필러인 것을 특징으로 하는 고분자 조성물.
- [청구항 6] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지; 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지; 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 포함하는 고분자 조성물로부터 제조된 성형품.
- [청구항 7] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계(단계 1); 및 상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 2)를 포함하는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.
- [청구항 8] 제7항에 있어서, 상기 단계 1은 폴리카보네이트계 수지를 20 내지 70 부피%, 폴리올레핀계 수지를 20 내지 70 부피%, 및 열 전도성 필러를 10 내지 60 부피%로 도입하여 혼합함으로써 수행되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.
- [청구항 9] 제7항에 있어서, 상기 단계 2의 압출은 250 내지 350 °C의 온도에서 수행되는 것을 특징으로 하는 고분자 조성물의 제조방법.
- [청구항 10] 10 내지 80 부피%의 폴리카보네이트계 수지, 10 내지 80 부피%의 폴리올레핀계 수지, 및 5 내지 80 부피%의 열 전도성 필러를 혼합하는 단계(단계 A);
상기 혼합된 혼합물을 열간압출하는 단계(단계 B); 및
상기 압출물을 사출성형하는 단계(단계 C)를 포함하는 고분자

조성물을 포함하는 성형품의 제조방법.

[Fig. 1]



[Fig. 2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2012/001662**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****C08L 69/00(2006.01)i, C08L 23/02(2006.01)i, C08K 3/04(2006.01)i, C08J 5/00(2006.01)i, C08L 101/12(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)

C08L 69/00; C08F 8/00; C08L 23/02; C08K 3/04; C08K 13/04; B82Y 30/00

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: polycarbonate, polyolefin, EOR, EPR, EPDM, polyethylene, polypropylene, carbon, thermoconductive, filler, hot extrusion, injection molding

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 07-157601 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 20 June 1995	1-6,8
Y	See claims 1-5; paragraphs [0010], [0011], [0018].	7,9,10
Y	US 2008-0234434 A1 (LIN, YE-GANG et al.) 25 September 2008 See claims 1-5, 12, 13, 17, 18.	7,9,10
X	EP 0428042 A2 (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 22 May 1991 See abstract; claims 1-13.	1,3-8
A	KR 10-2010-0058342 A (HANWHA CHEMICAL CORPORATION) 03 June 2010 See claims 1-10.	1-10



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

25 SEPTEMBER 2012 (25.09.2012)

Date of mailing of the international search report

25 SEPTEMBER 2012 (25.09.2012)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 139 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2012/001662

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 07-157601 A	20.06.1995	NONE	
US 2008-0234434 A1	25.09.2008	CN 101688055 A EP 2121840 A1 KR 10-2009-0120496 A US 2012-010365 A1 WO 2008-115253 A1	31.03.2010 25.11.2009 24.11.2009 12.01.2012 25.09.2008
EP 0428042 A2	22.05.1991	DE 69025130 D1 DE 69025130 T2 EP 0428042 A3 EP 0428042 B1 JP 03-155007 A JP 2883128 B2 JP 2883128 B2 US 05098610 A	14.03.1996 11.07.1996 13.05.1992 31.01.1996 03.07.1991 05.02.1999 19.04.1999 24.03.1992
KR 10-2010-0058342 A	03.06.2010	KR 10-2010-0136079 A TW 201035996 A WO 2010-059008 A3	28.12.2010 01.10.2010 27.05.2010

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC)) <i>C08L 69/00(2006.01)i, C08L 23/02(2006.01)i, C08K 3/04(2006.01)i, C08J 5/00(2006.01)i, C08L 101/12(2006.01)i</i>		
B. 조사된 분야 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) C08L 69/00; C08F 8/00; C08L 23/02; C08K 3/04; C08K 13/04; B82Y 30/00 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: 폴리카보네이트, 폴리올레핀, EOR, EPR, EPDM, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 카본, 열전도성, 필러, 열간압출, 사출성형		
C. 관련 문헌		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X Y Y X A	JP 07-157601 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 1995.06.20 청구항 1-5; 단락 [0010], [0011], [0018] 참조. US 2008-0234434 A1 (LIN, YE-GANG 외 2명) 2008.09.25 청구항 1-5, 12, 13, 17, 18 참조. EP 0428042 A2 (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 1991.05.22 요약; 청구항 1-13 참조. KR 10-2010-0058342 A (한화케미칼 주식회사) 2010.06.03 청구항 1-10 참조.	1-6, 8 7, 9, 10 7, 9, 10 1, 3-8 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 “E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 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 2012년 09월 25일 (25.09.2012)		국제조사보고서 발송일 2012년 09월 25일 (25.09.2012)
ISA/KR의 명칭 및 우편주소  대한민국 특허청 (302-701) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 82-42-472-7140		심사관 홍성란 전화번호 82-42-481-5405 

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 07-157601 A	1995.06.20	없음	
US 2008-0234434 A1	2008.09.25	CN 101688055 A EP 2121840 A1 KR 10-2009-0120496 A US 2012-010365 A1 WO 2008-115253 A1	2010.03.31 2009.11.25 2009.11.24 2012.01.12 2008.09.25
EP 0428042 A2	1991.05.22	DE 69025130 D1 DE 69025130 T2 EP 0428042 A3 EP 0428042 B1 JP 03-155007 A JP 2883128 B2 JP 2883128 B2 US 05098610 A	1996.03.14 1996.07.11 1992.05.13 1996.01.31 1991.07.03 1999.02.05 1999.04.19 1992.03.24
KR 10-2010-0058342 A	2010.06.03	KR 10-2010-0136079 A TW 201035996 A WO 2010-059008 A3	2010.12.28 2010.10.01 2010.05.27