



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2021년06월09일

(11) 등록번호 10-2262025

(24) 등록일자 2021년06월02일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 21/064 (2006.01) C01B 35/14 (2006.01)
C08K 3/38 (2006.01) C08K 9/06 (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01)

(52) CPC특허분류
C01B 21/0648 (2013.01)
C01B 35/14 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2015-0130543

(22) 출원일자 2015년09월15일

심사청구일자 2019년09월23일

(65) 공개번호 10-2016-0035552

(43) 공개일자 2016년03월31일

(30) 우선권주장
1020140126118 2014년09월22일 대한민국(KR)

(56) 선행기술조사문헌

KR101269653 B1*

KR1019940005067 B1*

KR1020140013831 A*

KR1020140057107 A*

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자

세종대학교산학협력단

서울특별시 광진구 능동로 209 (군자동, 세종대학교)

(72) 발명자

서영수

서울특별시 노원구 노원로 214 3동 104호 (하계동, 삼익선경아파트)

박건우

대전광역시 유성구 상대남로 26, 910동 1403호 (상대동, 도안신도시 트리폴시티아파트)

하승훈

경기도 용인시 수지구 신봉2로 26, 118동 802호 (신봉동, LG신봉자이1차아파트)

(74) 대리인

특허법인이상

전체 청구항 수 : 총 7 항

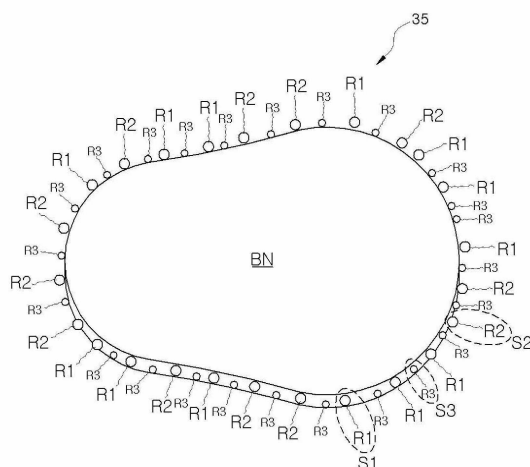
심사관 : 김광철

(54) 발명의 명칭 표면 개질된 질화붕소, 상기 입자가 분산된 조성물, 및 상기 조성물로 코팅된 와이어

(57) 요약

다중 표면 개질된 질화붕소, 상기 입자가 분산된 조성물, 및 상기 조성물로 코팅된 와이어를 제공한다. 다중 표면 개질된 질화붕소는 질화붕소 입자, 상기 질화붕소 입자의 표면에 결합되고 말단에 방향족기를 함유하는 제1 표면 개질제, 및 상기 질화붕소 입자의 표면에 결합되고 말단에 아민기 또는 에폭시기를 함유하는 제2 표면 개질제를 구비한다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C08K 3/38 (2013.01)

C08K 9/06 (2013.01)

C08L 101/00 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1415132218
부처명	산업통상자원부
과제관리(전문)기관명	한국에너지기술평가원
연구사업명	전력산업융합원천기술개발
연구과제명	모터코일(각형)용 나노융합 절연소재 개발
기 여 율	1/1
과제수행기관명	한국전기연구원
연구기간	2013.12.01 ~ 2014.09.30

명세서

청구범위

청구항 1

삭제

청구항 2

삭제

청구항 3

삭제

청구항 4

삭제

청구항 5

삭제

청구항 6

삭제

청구항 7

삭제

청구항 8

삭제

청구항 9

삭제

청구항 10

삭제

청구항 11

삭제

청구항 12

삭제

청구항 13

삭제

청구항 14

삭제

청구항 15

삭제

청구항 16

전도성 와이어; 및

상기 전도성 와이어 상에 형성되고 고분자 매트릭스 및 상기 고분자 매트릭스 내에 분산된 다중 표면 개질된 질화붕소를 함유하는 열전도성막을 포함하고,

상기 다중 표면 개질된 질화붕소는

판상형의 육방정계 질화붕소이고, 상하부면들인 판상면들과 상기 판상면에 비해 표면 에너지가 큰 측면을 갖는 질화붕소 입자; 상기 질화붕소 입자의 측면에 결합되고 말단에 방향족기를 함유하는 제1 표면 개질제; 및 상기 질화붕소 입자의 측면에 결합되고 말단에 아민기 또는 에폭시기를 함유하는 제2 표면 개질제를 포함하고,

상기 질화붕소 입자의 판상면은 상기 전도성 와이어를 바라보는, 와이어.

청구항 17

제16항에 있어서,

상기 고분자 매트릭스는 폴리에스테르, 폴리에스테르이미드, 폴리에스테르아미드, 폴리에스테르아미드이미드, (트리(2-하이드록시 에틸)이소시아누에이트 트리아크릴레이트)-폴리에스테르이미드, 폴리에테르이미드, 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리이미드, 폴리우레탄, 폴리비닐포르말, 에폭시 수지 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것인 와이어.

청구항 18

제16항에 있어서,

상기 전도성 와이어와 상기 열전도성막 사이에,

유기 절연 고분자를 포함하는 내부분방전성층을 더 포함하는 와이어.

청구항 19

제18항에 있어서,

상기 내부분방전성층은 상기 유기 절연 고분자 내에 분산된 무기 나노필러를 더 포함하는 와이어.

청구항 20

제19항에 있어서,

상기 무기 나노필러는 실리카, 티타니아, 알루미늄, 지르코니아, 이트리아, 산화크롬, 산화 아연, 산화철, 클레이, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것을 포함하는 와이어.

청구항 21

삭제

청구항 22

제16항에 있어서,

상기 질화붕소 입자의 판상면과 상기 전도성 와이어의 표면은 평행한 와이어.

청구항 23

제16항에 있어서,

상기 질화붕소 입자의 판상면이 상기 전도성 와이어의 표면과 이루는 각은 상기 질화붕소 입자의 판상면이 상기 전도성 와이어의 표면에 수직인 수선과 이루는 각에 비해 작은 와이어.

발명의 설명

기술 분야

- [0001] 본 발명은 표면 개질된 무기입자에 관한 것으로 구체적으로는 표면 개질된 질화 붕소 입자, 상기 입자가 분산된 조성물, 및 상기 조성물로 코팅된 와이어에 관한 것이다.

배경 기술

- [0002] 열전도성 재료는 전자부품/제품의 고집적화와 소비전력 증가로 인해 이의 사용 범위와 사용량이 대폭 증가하는 추세를 보이고 있다. 기존 금속을 포함한 열전도성 재료는 낮은 성형성 및 생산성에 의해 성형성과 생산성이 우수한 재료를 이용하여 금속 복합체를 대체하려는 많은 노력이 있어 왔다. 따라서 열전도성과 사출 성형성을 높이기 위해 세라믹, 카본 등의 열전도성 필러와 고분자로 이루어진 복합체를 사용하여 일정부분의 금속을 대체하여 사용되고 있다.
- [0003] 세라믹에서 전기 절연체로 열의 이동은 자유 전자 대신 주로 포논에 의한 격자 진동에 의해 일어나며 이때 발생하는 포논산란은 주로 열저항에 의해 유도되는데 매트릭스와 필러 사이의 열장벽의 존재와 관련되어 있다. 따라서 산란을 억제하여 포논의 이동성을 증가하려는 연구가 이루어지고 있다.
- [0004] 나노필러가 함유된 고분자 복합재료의 열전도도를 향상시키기 위해서는 매트릭스 내에서 열전도성 필러가 연속적인 네트워크를 형성하도록 만들거나 인접한 필러 입자들 사이에서 열 저항 접합의 수를 감소시키기 위해 크기가 큰 입자를 사용하거나 열전도성 필러 사이의 열접촉 저항을 줄일 수 있는 형태의 필러를 사용하여 열전도성 필러와 매트릭스의 접촉이 용이해지도록 한다.
- [0005] 대부분의 고분자 재료는 0.1~0.3 W/mK 수준의 낮은 열전도도 값을 갖고 있으며 높은 결정성을 갖는 고분자는 비결정성 고분자보다 높은 열전도도 값을 보인다. 따라서 열전도성 복합재료 제조시 결정성 고분자를 매트릭스로 선정하는 것이 유리하지만 비결정성 고분자보다 가공 조건이 난해한 문제점이 있다.
- [0006] 상기 내용과 더불어 다양한 입자 크기 분포를 갖는 필러를 선택하고 필러와 고분자 매트릭스의 계면접착력 및 젖음성을 향상시킬 수 있는 용융 점도가 낮은 고분자를 사용하면, 고분자 복합재료의 공극 형성 가능성을 감소시켜 복합재료의 열전도도 향상에 효과적이거나, 고분자와 필러의 상용성이 좋지 않을 경우에는 적용되지 않는 문제점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 층상구조를 갖는 질화붕소는 열전도성이 우수하나, 그의 판상 형태로 인해 서로 간에 응집이 잘 일어날 수 있는 문제점이 있어, 열전도성 재료로 사용하기에 힘들다.
- [0008] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 분산성이 향상되도록 표면 개질된 질화붕소를 제공함에 있다.
- [0009] 본 발명이 해결하고자 하는 다른 과제는 표면 개질된 질화붕소를 함유하는 코팅용 조성물을 제공함에 있다.
- [0010] 본 발명이 해결하고자 하는 또 다른 해결과제는 표면 개질된 질화붕소를 함유하는 코팅층을 구비하는 전자 부품을 제공함에 있다.

과제의 해결 수단

- [0011] 상기 과제를 이루기 위하여 본 발명의 일 측면은 다중 표면 개질된 질화붕소를 제공한다. 이는 질화붕소 입자, 상기 질화붕소 입자의 표면에 결합되고 말단에 방향족기를 함유하는 제1 표면 개질제, 및 상기 질화붕소 입자의 표면에 결합되고 말단에 아민기 또는 에폭시기를 함유하는 제2 표면 개질제를 구비한다.
- [0012] 상기 표면 개질제들은 실란화합물들이고, 상기 질화붕소 입자의 표면에 실록산 결합에 의해 결합될 수 있다. 상기 질화붕소 입자는 판상형의 육방정계 질화붕소일 수 있다.
- [0013] 상기 제1 표면 개질제의 방향족기는 페닐기(phenyl group), 아닐리닐기(aniliny group), 벤조일기(benzoyl

group), 페녹시기(phenoxy group), 바이페닐기(biphenyl group), 또는 나프탈렌기(naphthalenyl group)일 수 있다. 상기 제1 표면 개질제는 트리메톡시페닐실란, N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]아닐린, 알틸페닐디클로로실란, 아미노페닐트리메톡시실란, t-부틸페닐디클로로실란, p-(t-부틸)페닐트리클로로실란, 3,5-디메톡시페닐트리메톡시실란, 디페닐디에톡시실란, 디페닐디메톡시실란, 디페닐메틸에톡시실란, 3-(p-메톡시페닐)프로필트리클로로실란, p-메톡시페닐트리메톡시실란, 페닐메틸디클로로실란, 페닐트리메톡시실란, 3-페녹시프로필디메틸클로로실란, 3-페녹시프로필메틸디클로로실란, 3-페녹시프로필트리클로로실란, 페닐디메틸클로로실란, 페닐디메틸에톡시실란, 페닐에틸디클로로실란, 페닐메틸디클로로실란, 1-페닐-1-(메틸디클로로실릴)부탄, 페닐메틸디메톡시실란, 페닐메틸디에톡시실란, (3-페닐프로필)트리클로로실란, 페닐트리클로로실란, 페닐트리에톡시실란, 페닐트리메톡시실란, 트리페닐클로로실란, 트리페닐에톡시실란, (트리페닐메틸)메틸디클로로실란, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다. 상기 제1 표면 개질제는 말단에 아닐리닐기를 구비하는 N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]아닐린일 수 있다.

[0014] 상기 제2 표면 개질제의 아민기는 1차 아민기, 2차 아민기, 3차 아민기, 또는 디아민기일 수 있다. 상기 제2 표면 개질제는 3-[2-(2-아미노에틸아미노)에틸아미노]프로필트리메톡시실란, N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]에틸렌디아민, (3-아미노프로필)트리메톡시실란, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다. 상기 제2 표면 개질제는 말단에 디아민기를 구비하는 N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]에틸렌디아민일 수 있다.

[0015] 상기 제2 표면 개질제의 에폭시는 에폭사이드기, 글리시딜기, 또는 글리시딜옥시기일 수 있다. 상기 제2 표면 개질제는 3-에폭시프로필트리메톡시실란, 3-에폭시프로필트리에톡시실란, 4-에폭시부틸트리메톡시실란, 4-에폭시부틸트리에톡시실란, 3-글리시딜옥시프로필트리메톡시실란, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다. 상기 제2 표면 개질제는 말단에 글리시딜옥시기를 구비하는 3-글리시딜옥시프로필트리메톡시실란일 수 있다.

[0016] 상기 질화붕소 입자의 표면에 말단에 알킬기를 함유하는 제3 표면 개질제가 더 결합될 수 있다.

[0017] 상기 과제를 이루기 위하여 본 발명의 다른 측면은 코팅용 조성물을 제공한다. 상기 코팅용 조성물은 고분자 혹은 고분자 전구체(polymer precursor) 100 중량부, 앞서 설명한 바와 같은 다중 표면 개질된 질화붕소 1 내지 80 중량부, 및 잔부의 용매를 포함한다. 상기 고분자 전구체는 에폭시수지, 페놀수지, 폴리에스테르, 폴리에스테르이미드, 폴리에스테르아미드, 폴리에스테르아미드이미드, (트리(2-하이드록시 에틸)이소시아누에이트 트리아크릴레이트)-폴리에스테르이미드, 폴리에테르이미드, 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리이미드, 폴리우레탄, 폴리비닐포름알, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다.

[0018] 상기 과제를 이루기 위하여 본 발명의 또 다른 측면은 와이어를 제공한다. 이는 전도성 와이어, 및 상기 전도성 와이어 상에 형성된 열전도성막을 구비한다. 상기 열전도성막은 고분자 매트릭스 및 상기 고분자 매트릭스 내에 분산된 앞서 설명한 바와 같은 다중 표면 개질된 질화붕소를 함유한다.

[0019] 상기 고분자 매트릭스는 폴리에스테르, 폴리에스테르이미드, 폴리에스테르아미드, 폴리에스테르아미드이미드, (트리(2-하이드록시 에틸)이소시아누에이트 트리아크릴레이트)-폴리에스테르이미드, 폴리에테르이미드, 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리이미드, 폴리우레탄, 폴리비닐포름알, 에폭시 수지, 페놀 수지 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택될 수 있다.

[0020] 상기 전도성 와이어와 상기 열전도성막 사이에, 유기 절연 고분자 매트릭스, 및 상기 유기 절연 고분자 매트릭스 내에 분산된 무기 나노필러를 포함하는 내부분방전층이 배치될 수 있다. 상기 무기 나노필러는 실리카, 티타니아, 알루미나, 지르코니아, 이트리아, 산화크롬, 산화 아연, 산화철, 클레이, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택될 수 있다.

[0021] 상기 질화붕소 입자는 판상형의 입자이고, 상기 질화붕소 입자의 판상면은 상기 전도성 와이어를 바라볼 수 있다. 상기 질화붕소 입자의 판상면과 상기 전도성 와이어의 표면은 평행할 수 있다. 상기 질화붕소 입자의 판상면이 상기 전도성 와이어의 표면과 이루는 각은 상기 질화붕소 입자의 판상면이 상기 전도성 와이어의 표면에 수직인 수선과 이루는 각에 비해 작을 수 있다.

발명의 효과

[0022] 본 발명의 실시예들에 따르면, 방향족기를 말단에 구비하는 표면 개질제와 아민기 또는 에폭시기를 말단에 구비하는 표면 개질제를 사용하여 질화붕소의 표면을 개질함으로써, 질화붕소의 표면 상에 표면 개질제가 차지하는

표면 점유율을 크게 향상시켜, 고분자 용액 또는 고분자 매트릭스에 대해 분산성을 크게 향상시킬 수 있다. 이와 더불어서, 방향족기와 아민기 또는 에폭시기는 고분자 용액 내에서 고분자와 용매에, 고분자 매트릭스 내에서는 고분자에 강한 상호작용을 나타낼 수 있어 분산성이 유지될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0023] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 표면 개질된 질화 붕소를 나타낸 개략도이다.

도 2a는 본 발명의 일 실시예에 따른 와이어의 단면을 나타낸 개략도이고, 도 2b는 도 2a의 B 부분을 확대하여 나타낸 단면도이다.

도 3a는 실험예 1에 따른 질화붕소(20 wt%)-PAI 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이고, 도 3b는 비교예 2에 따른 질화붕소(20 wt%)-PAI 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이다.

도 4a는 실험예 2에 따른 질화붕소-에폭시 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이고, 도 4b는 비교예 7에 따른 질화붕소-에폭시 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0024] 이하, 본 발명을 보다 구체적으로 설명하기 위하여 본 발명에 따른 바람직한 실시예를 첨부된 도면을 참조하여 보다 상세하게 설명한다. 그러나, 본 발명은 여기서 설명되는 실시예에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 명세서 전체에 걸쳐서 동일한 참조번호들은 동일한 구성요소들을 나타낸다.

[0025] 본 명세서에서, 어떤 층이 다른 층 상에 위치한다고 함은 이들 층들이 직접적으로 접해있는 것 뿐 아니라 이들 층들 사이에 또 다른 층(들)이 위치하는 것을 의미할 수 있다.

[0026] 제1 실시예 : 다중 실란으로 표면 개질된 질화붕소

[0027] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 표면 개질된 질화 붕소를 나타낸 개략도이다.

[0028] 도 1을 참조하면, 질화 붕소 입자(BN)는 비정질 질화붕소, 결정질 질화붕소 또는 이들의 복합체일 수 있다. 일 예로서, 질화 붕소(BN)는 흑연과 유사한 결정구조를 갖는 육방정계 질화붕소(hexagonal BN)일 수 있다. 다시 말해서, 질화 붕소(BN)는 육각형의 메쉬 층들이 다중층으로 적층된 구조를 갖거나 단일층으로 이루어질 수 있고, 판상형의 입자일 수 있다. 이러한 판상형의 질화 붕소(BN)는 약 0.1 내지 약 20 μm , 구체적으로 0.3 내지 약 5 μm , 더 구체적으로는 0.3 내지 약 1 μm 의 입자 직경을 가질 수 있고, 또한 약 1nm 내지 약 3 μm , 또는 약 10nm 내지 약 500nm, 또는 약 10nm 내지 약 200nm, 또는 약 10nm 내지 약 100nm, 또는 약 10nm 내지 약 30nm의 입자 두께를 가질 수 있다. 상기 입자 직경 또는 상기 입자 두께는 여러 입자들의 평균값일 수 있다. 또한, 이러한 판상형의 질화 붕소(BN)은 두께에 대한 입자 직경의 비 즉, 종횡비(aspect ratio)는 1 : 10 내지 1 : 100, 구체적으로는 1 : 30 내지 1 : 70일 수 있다. 이와 같이 두께에 대한 입자 직경이 큰 질화 붕소(BN)를 후술하는 와이어의 코팅층으로 사용하는 경우 보다 효과적으로 열전도성을 증가시킬 수 있다.

[0029] 또한, 이러한 판상형의 질화 붕소(BN)는 메쉬층의 표면에 해당하는 상하부 면들 즉, 판상면에 비해 측면에서 표면 에너지(surface energy)가 크고 그에 따라 안정성이 낮을 수 있다. 다시 말해서, 이러한 판상형의 질화 붕소(BN)는 상하부 면들에 비해 측면에 더 많은 반응 사이트들 즉, 하이드록실기들(hydroxyl groups)을 가질 수 있다.

[0030] 한편, 제1 및 제2 표면 개질제들(S_1 , S_2)이 제공될 수 있다. 이에 더하여, 제3 표면 개질제(S_3)가 추가적으로 제공될 수 있다. 상기 표면 개질제들(S_1 , S_2 , S_3)은 상기 질화 붕소에 결합하는 헤드 그룹(head group), 말단 기능기(terminal functional group), 및 헤드 그룹과 말단 기능기를 연결하는 테일부(tail part)를 가질 수 있다. 상기 테일부는 C1 내지 C10 (C1, C2, C3, C4, C5, C6, C7, C8, C9, C10), 구체적으로는 C1 내지 C6, 더 구체적으로는 C1 내지 C4의 알킬기일 수 있다. 일 실시예에서, 상기 알킬기 중 하나 이상의 $-\text{CH}_2-$ 는 $-\text{NH}-$ 로 치환될 수도 있다. 그러나, 이에 한정되지 않고 상기 테일부는, 특히 말단 기능기가 알킬기일 경우에는, 생략될 수도 있다.

[0031] 상기 표면 개질제들(S_1 , S_2 , S_3)은 각각이 헤드 그룹으로서 실란기, 구체적으로, 1, 2 또는 3개의 치환기로 치환된 실란기를 구비하는 실란일 수 있다. 상기 실란기의 치환기(들)는 하이드록시기(hydroxyl group), 알콕시기(alkoxy group), 할로기(halo group), 또는 이들의 조합일 수 있다. 더 구체적으로, 상기 표면 개질제들(S_1 ,

S_2 , S_3)은 각각이 헤드 그룹으로서 트리알콕시 실란기, 디알콕시 실란기, 알콕시 실란기, 디알콕시할로 실란기, 알콕시디할로 실란기, 트리할로 실란기, 디할로실란기, 할로실란기를 구비할 수 있다. 여기서, 알콕시기는 메톡시기 또는 에톡시기일 수 있고, 할로기는 클로로기일 수 있다. 이러한 실란기는 상기 판상형의 질화 붕소(BN)의 상하부면 보다는 측면들에서 반응 사이트를 예를 들어, 하이드록실기들(hydroxyl groups)와 반응하여 질화 붕소(BN)와 결합 예를 들어, 실록산 결합에 의해 결합될 수 있다.

[0032] 상기 각 표면 개질제(S_1 , S_2 , S_3)는 서로 다른 말단 기능기를 가질 수 있다.

[0033] 구체적으로, 제1 표면 개질제(S_1)는 방향족기(R_1)를 말단 기능기로서 구비할 수 있다. 상기 방향족기는 치환 또는 비치환될 수 있고, 페닐기(phenyl group), 아닐리닐기(anilinyll group), 벤조일기(benzoyl group), 페녹시기(phenoxy group), 바이페닐기(biphenyl group), 또는 나프탈렌기(naphthalenyl group)일 수 있다. 상기 방향족기에 대한 치환기는 C1, C2, C3 또는 C4 알킬기, C1, C2, 또는 C3 알콕시기, C2, 또는 C3 알릴기, 아민기, 하이드록실기, 또는 할로젠기일 수 있다. 일 예에서, 상기 제1 표면 개질제(S_1)의 방향족기는 치환 또는 비치환된 아닐리닐기(anilinyll group)일 수 있고, 나아가 치환되지 않은 아닐리닐기(anilinyll group)일 수 있다.

[0034] 방향족기를 말단기능기로서 구비하는 제1 표면 개질제(S_1)는 트리메톡시페닐실란 (trimethoxyphenylsilane), N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]아닐린(N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]aniline), 알릴페닐디클로로실란(allylphenyldichlorosilane), 아미노페닐트리메톡시실란 (aminophenyltrimethoxysilane), t-부틸페닐디클로로실란 (t-butylphenyldichlorosilane), p-(t-부틸)페네틸트리클로로실란 (p-(t-butyl)phenethyltrichlorosilane), 3,5-디메톡시페닐트리메톡시실란 (3,5-dimethoxyphenyltriethoxysilane), 디페닐디에톡시실란 (diphenyldiethoxysilane), 디페닐디메톡시실란 (diphenyldimethoxysilane), 디페닐메틸에톡시실란 (diphenylmethylethoxysilane), 3-(p-메톡시페닐)프로필트리클로로실란 (3-(p-methoxyphenyl)propyltrichlorosilane), p-메톡시페닐트리메톡시실란 (p-methoxyphenyltrimethoxysilane), 페네틸메틸디클로로실란 (phenethylmethyldichlorosilane), 페네틸트리메톡시실란 (phenethyltrimethoxysilane), 3-페녹시프로필디메틸클로로실란 (3-phenoxypropyldimethylchlorosilane), 3-페녹시프로필메틸디클로로실란 (3-phenoxypropylmethyldichlorosilane), 3-페녹시프로필트리클로로실란 (3-phenoxypropyltrichlorosilane), 페닐디메틸클로로실란 (phenyldimethylchlorosilane), 페닐디메틸에톡시실란 (phenyldimethylethoxysilane), 페닐에틸디클로로실란 (phenylethyldichlorosilane), 페닐메틸디클로로실란 (phenylmethyldichlorosilane), 1-페닐-1-(메틸디클로로실릴)부탄 (1-phenyl-1-(methyldichlorosilyl)butane), 페닐메틸디메톡시실란 (phenylmethyldimethoxysilane), 페닐메틸디에톡시실란 (phenylmethyldiethoxysilane), (3-페닐프로필)트리클로로실란 ((3-phenylpropyl)trichlorosilane), 페닐트리클로로실란 (phenyltrichlorosilane), 페닐트리메톡시실란 (phenyltriethoxysilane), 페닐트리메톡시실란 (phenyltrimethoxysilane), 트리페닐클로로실란 (triphenylchlorosilane), 트리페닐에톡시실란 (triphenylethoxysilane), (트리페닐메틸)메틸디클로로실란 ((triphenylmethyl)methyldichlorosilane), 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다.

[0035] 제2 표면 개질제(S_2)는 아민기 또는 에폭시기(R_2)를 말단 기능기로서 구비할 수 있다. 상기 아민기(R_2)는 치환 또는 비치환될 수 있고, 1차 아민기, 2차 아민기, 3차 아민기, 또는 디아민기일 수 있으나 이에 한정되는 것은 아니다. 상기 디아민기는 에틸렌디아민, 프로판디아민, 또는 부탄디아민일 수 있다. 아민기(R_2)를 갖는 제2 표면 개질제(S_2)는 3-[2-(2-아미노에틸아미노)에틸아미노]프로필트리메톡시실란, N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]에틸렌디아민, (3-아미노프로필)트리메톡시실란, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택될 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[0036] 한편, 상기 에폭시기(R_2)는 에폭사이드기, 글리시딜기, 또는 글리시딜옥시기일 수 있다. 이러한 에폭시기(R_2)를 말단 기능기로서 구비하는 제1 표면 개질제(S_2)는, 구체적으로, 3-에폭시프로필트리메톡시실란, 3-에폭시프로필트리메톡시실란, 4-에폭시부틸트리메톡시실란, 4-에폭시부틸트리메톡시실란, 3-글리시딜옥시프로필트리메톡시실란, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다.

[0037] 제3 표면 개질제(S_3)는 알킬기(R_3)를 말단 기능기로서 구비할 수 있다. 앞서 설명한 바와 같이, 이 경우, 상기 테일부는 생략될 수도 있다. 상기 알킬기(R_3)는 1 내지 C10 (C1, C2, C3, C4, C5, C6, C7, C8, C9, C10), 구체적으로는 C1 내지 C6, 더 구체적으로는 C1 내지 C4의 알킬기일 수 있다. 구체적으로, 제3 표면 개질제(S_3)는

에틸트리메톡시실란 (ethyltrimethoxysilane), 메톡시트리메틸실란 (methoxytrimethylsilane), 에톡시트리메틸실란 (ethoxytrimethylsilane), 트리에틸클로로실란(triethylchlorosilane), 트리메틸클로로실란(trimethylchlorosilane), 헵틸트리메톡시실란(heptyltrimethoxysilane), 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것일 수 있다.

[0038] 상기 표면개질된 구체적으로 실란 표면개질된 질화붕소(35)는 제1 내지 제3 표면 개질제들(S_1 , S_2 , S_3) 즉, 제1 실란, 제2 실란, 및 제3 실란 이외의 추가적인 표면 개질제들 예를 들어, 실란들이 상기 질화붕소(BN)의 표면에 화학적으로 결합된 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 표면개질된 질화붕소(35)는 분말상, 젤상, 또는 액상일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0039] 상기 표면개질된 질화붕소(35)에서 방향족기(R_1)를 말단 기능기로서 구비하는 적어도 한 쌍의 제1 표면 개질제들(S_1) 사이에 아민기 또는 에폭시기(R_2)를 말단 기능기로서 구비하는 적어도 하나의 제2 표면 개질제(S_2)가 배치될 수 있다. 이에 더하여, 상기 제1 표면 개질제(S_1)와 상기 제2 표면 개질제(S_2) 사이에 알킬기(R_3)를 말단 기능기로서 구비하는 제3 표면 개질제(S_3)가 배치될 수 있다. 상기 말단 기능기들은 방향족기, 아민기 또는 에폭시기, 그리고 알킬기의 순으로 그 크기가 작아진다. 이와 같이, 크기가 상대적으로 큰 말단 기능기들을 구비하는 표면 개질제들 사이에 크기가 상대적으로 작은 말단 기능기를 구비하는 표면 개질제가 배치될 수 있다.

[0040] 질화 붕소를 다중 표면 개질제를 사용하여 표면 개질하는 방법은 다음과 같을 수 있다.

[0041] 먼저, 질화붕소 분말을 용매 내에 넣고 혼합하여 혼합액을 형성할 수 있다. 상기 혼합액에 초음파를 가할 수 있다. 이 경우, 상기 질화붕소(BN)는 더 얇은 두께를 갖도록 박리 즉, 층상분리될 수 있으며, 또한 질화붕소(BN)의 표면 특히 측면에 더 많은 반응 사이트(ex. -OH) 들을 생성시킬 수 있다.

[0042] 이 후, 상기 혼합액 내에 방향족기(R_1)를 함유하는 제1 실란(S_1)을 첨가한 후, 여기에 초음파를 가할 수 있다. 이 과정에서, 상기 질화붕소(BN)는 더욱 박리될 수 있고 또한 더 많은 반응 사이트를 가질 수 있음과 동시에, 상기 제1 실란(S_1)과 실록산 결합에 의해 결합될 수 있다. 그 결과, 상기 제1 실란(S_1)에 의해 표면 개질된 질화붕소(BN)를 얻을 수 있다.

[0043] 상기 제1 실란(S_1)에 의해 표면 개질된 질화붕소(BN)가 분산된 분산액 내에 아민기 또는 에폭시기(R_2)를 함유하는 제2 실란(S_2)을 첨가하고 초음파를 가할 수 있다. 이 과정에서도 마찬가지로, 상기 질화붕소(BN)는 더욱 박리될 수 있고 또한 더 많은 반응 사이트를 가질 수 있음과 동시에, 상기 제2 실란(S_2)과 실록산 결합에 의해 결합될 수 있다. 그 결과, 상기 제1 실란(S_1) 및 제2 실란(S_2)에 의해 표면 개질된 질화붕소(35)를 얻을 수 있다.

[0044] 여기에 다시 제3 실란(S_3)을 넣고 같은 과정을 거치면 제1 내지 제3 실란(S_1 , S_2 , S_3)들에 의해 표면 개질된 질화붕소(35)를 얻을 수 있다.

[0045] 이 후, 상기 용매 내에 분산된 표면 개질된 질화붕소(35)를 여과 및 세척하여 미반응 실란을 제거할 수 있다. 또한, 세척된 고형물을 건조하여 다중 실란에 의해 표면 개질된 질화붕소 분말을 얻을 수 있다. 그러나, 이에 한정되지 않고 실란 표면 개질된 질화붕소(35)는 용매 상에 분산된 졸상, 젤상, 또는 액상으로 얻을 수도 있다.

[0046] 한편, 제1 실란(S_1)의 말단 기능기 즉, 방향족기(R_1)는 제2 실란(S_2)의 말단 기능기 즉, 아민기 또는 에폭시기(R_2)에 비해 크다. 따라서, 질화붕소의 표면 상에 제1 실란(S_1)은 다소 층상층상 결합될 수 있다. 이 후, 제1 실란들(S_1)에 비해 작은 말단 기능기를 갖는 제2 실란(S_2)은, 제1 실란들(S_1) 사이의 잔존 반응 사이트에 용이하게 접근 및 결합될 수 있다. 이와 마찬가지로, 제3 실란(S_3)의 말단 기능기 즉, 알킬기(R_3)는 제1 실란(S_1)과 제2 실란(S_2)의 그것들(R_1 , R_2)에 비해 더 작다. 따라서, 제3 실란(S_3)은, 제1 실란들(S_1)과 제2 실란(S_2) 사이의 잔존 반응 사이트에 용이하게 접근 및 결합될 수 있다. 이와 같이, 서로 크기가 다른 말단 기능기들을 갖는 서로 다른 종류의 실란들을 사용하되, 크기가 큰 말단 기능기를 갖는 실란을 먼저 질화붕소와 반응시킨 후 또는 그와 동시에 그에 비해 크기가 작은 말단 기능기를 갖는 실란을 질화붕소와 반응시켜, 질화붕소를 표면 개질함에 따라, 상기 표면 개질된 질화붕소(35)에서 방향족기(R_1)를 말단 기능기로서 구비하는 적어도 한 쌍의 제1 실란들(S_1) 사이에 아민기 또는 에폭시기(R_2)를 말단 기능기로서 구비하는 적어도 하나의 제2 실란(S_2)이 배치될

수 있다. 이에 더하여, 상기 제1 실란(S_1)과 상기 제2 실란(S_2) 사이에 알킬기(R_3)를 말단 기능기로서 구비하는 제3 실란(S_3)이 배치될 수 있다. 이 경우, 질화붕소의 표면 상에 실란이 차지하는 표면 점유율(surface coverage)이 크게 향상될 수 있다. 이와 같이, 실란에 의한 표면 점유율이 향상된 질화붕소는 후술하는 고분자 용액 또는 고분자 매트릭스에 대해 크게 향상된 분산성을 나타낼 수 있다.

[0047] 상기 용매는 극성 용매일 수 있는데, 예를 들어, 톨루엔, 자일렌, 에탄올, 메탄올, 크레졸, 물, 아세톤, 사이클로헥산, 페놀, N-메틸피롤리돈 (N-methylpyrrolidone, NMP), 글리콜에테르, N,N-디메틸포름아마이드 (N,N-Dimethylformamide, DMF), 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0048] 상기 초음파를 조사하는 과정, 즉, 초음파 처리는, 종래 기술의 열과 용매만을 사용하여 수행되었던 표면 처리 과정에 비해 소요 시간 단축의 이점을 보유하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 고분자 용액 또는 고분자 매트릭스에 대해 만족할만한 분산성을 나타내는 표면점유율(surface coverage)을 확보하기 위하여 소요되는 표면 처리시간이 상기 초음파 처리를 통해 단축될 수 있다. 예를 들어, 종래 열을 통한 처리의 경우 9일 정도 걸렸다면, 배스(bath) 초음파의 경우 상기 표면 처리에 소요되는 시간이 약 3 일 정도일 수 있고, 혼(horn) 초음파의 경우 상기 표면 처리에 소요되는 시간이 약 3.5 시간 정도로 획기적으로 단축될 수 있다.

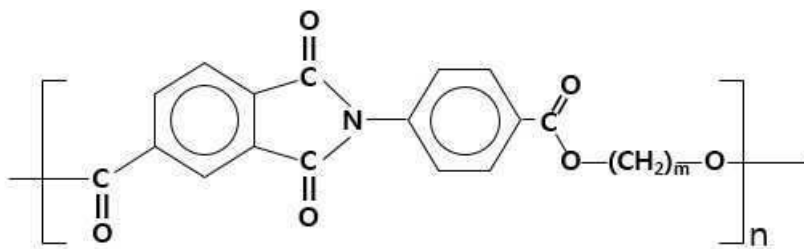
[0049] **제2 실시예 : 다중 실란으로 표면 개질된 질화붕소가 분산된 코팅용 조성물**

[0050] 본 발명의 다른 실시예에 따른 다중 실란으로 표면 개질된 질화붕소가 분산된 코팅용 조성물은, 고분자 또는 고분자 전구체(polymer precursor) 100 중량부, 표면 개질된 질화붕소 1 내지 200 중량부, 및 잔부의 용매를 포함할 수 있다. 상기 질화붕소는 제1 실시예에 설명한 바와 같이 제1 및 제2 실란, 추가적으로 제3 실란으로 표면 개질될 수 있으며, 일 예로서, 1 내지 80 중량부, 10 내지 70 중량부, 10 내지 50 중량부, 20 내지 30 중량부, 20 내지 60 중량부, 또는 30 내지 50 중량부로 함유될 수 있다.

[0051] 상기 고분자 전구체는 고분자화될 수 있는 물질로서 모노머, 모노머가 수 내지 수십개 결합된 올리고머 또는 프리폴리머일 수 있다. 일 예로서, 상기 고분자 전구체는 프리폴리머일 수 있는데, 상기 프리폴리머는 폴리에스테르(ex. 폴리에틸렌테레프탈레이트), 폴리에스테르이미드, 폴리에스테르아미드, 폴리에스테르아미드이미드, (트리(2-하이드록시 에틸)이소시아누에이트 트리악릴레이트)-폴리에스테르이미드, 폴리에테르이미드, 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리아미드, 폴리우레탄, 폴리비닐포르말, 에폭시 수지, 페놀 수지, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 고분자 전구체는 그의 주쇄 내에 방향족기, 에폭시기, 또는 이들의 조합을 포함할 수 있다.

[0052] 일 예에서, 상기 프리폴리머는 하기 화학식 1로 나타난 폴리에스테르이미드일 수 있다.

[0053] [화학식 1]



[0054]

[0055] 상기 화학식 1에서, n은 2 내지 99, m은 1 내지 4의 정수이다.

[0056] 일 예에서, 상기 프리폴리머는 하기 화학식 2로 나타난 폴리아미드이미드일 수 있다.

의 표면은 말단 기능기로서 방향족기를 함유하는 제1 실란과 말단 기능기로서 아민기를 함유하는 제2 실란과의 화학결합 구체적으로는 실록산 결합에 의해 표면 개질된 것일 수 있다. 방향족기를 함유하는 제1 실란과 아민기를 함유하는 제2 실란은 제 1 실시예에 기술된 것과 유사한 것들일 수 있다.

[0071] 상기 내부분방전성층(20)에서 실란으로 표면 개질된 무기 나노필러(25)의 함량은 약 0.1 중량% 내지 약 30 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 5 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 10 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 20 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 30 중량%, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%, 약 5 중량% 내지 약 20 중량%, 약 5 중량% 내지 약 30 중량%, 약 10 중량% 내지 약 20 중량%, 약 10 중량% 내지 약 30 중량%, 또는 약 20 중량% 내지 약 30 중량%일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0072] 이러한 내부분방전성층(20)의 두께는 10 μ m 내지 45 μ m일 수 있다. 그러나, 이에 한정되는 것은 아니고 당업계에서 통상적으로 적용되는 두께를 모두 적용할 수 있다.

[0073] 내부분방전성층(20) 상에 열전도성층(30)이 배치될 수 있다. 그러나, 이에 한정되는 것은 아니고, 이 경우 내부분방전성층(20)은 생략될 수도 있다. 내부분방전성층(20) 상에 열전도성층(30)이 배치된 경우 상기 열전도성층(30)의 두께는 5 내지 10 μ m일 수 있다. 그러나, 내부분방전성층(20)이 생략된 경우 상기 열전도성층(30)의 두께는 20 내지 50 μ m일 수 있다.

[0074] 열전도성층(30)은 제2 실시예에서 설명된 조성물 즉, 제1 실시예에 설명한 제1 및 제2 실란, 추가적으로 제3 실란으로 표면 개질된 질화붕소(35), 고분자 전구체(polymer precursor), 및 잔부의 용매를 포함하는 조성물을 상기 전도성 와이어(10) 상에 코팅한 후 건조 및 경화시켜 제조될 수 있다. 상기 코팅과정에서, 상기 전도성 와이어(10) 상에 상기 조성물을 도포한 후, 다이스(속이 빈 원통형의 공구, dies)를 사용함으로써 상기 전도성 와이어(10) 상에 상기 조성물이 균일하게 코팅될 수 있도록 할 수 있다.

[0075] 상기 열전도성층(30)은 상기 경화과정에서 상기 고분자 전구체가 경화된 고분자 매트릭스 및 고분자 매트릭스 내에 분산된 다중 실란에 의해 표면 개질된 질화붕소(35)를 포함할 수 있다. 상기 건조 및 경화단계는 동시에 수행될 수 있는데, 구체적으로 약 350 $^{\circ}$ C 내지 약 550 $^{\circ}$ C의 강한 열을 가함으로써 용매의 급속한 건조와 상기 경화가 동시에 수행될 수 있다. 그러나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0076] 상기 고분자 매트릭스는 폴리에스테르, 폴리에스테르이미드, 폴리에스테르아미드, 폴리에스테르아미드이미드, (트리(2-하이드록시 에틸)이소시아누에이트 트리아크릴레이트)-폴리에스테르이미드, 폴리에테르이미드, 폴리아미드, 폴리아미드이미드, 폴리이미드, 폴리우레탄, 폴리비닐포르말, 에폭시 수지, 페놀 수지, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0077] 상기 표면 개질된 질화붕소(35)는 2 이상의 실란에 의해 표면이 개질된 것으로, 제1 실란은 말단 기능기로서 방향족기를 함유하는 제1 실란과 말단 기능기로서 아민기 또는 에폭시기를 함유하는 제2 실란과의 화학결합 구체적으로는 실록산 결합에 의해 표면 개질된 것일 수 있다. 방향족기를 함유하는 제1 실란과 아민기 또는 에폭시기를 함유하는 제2 실란은 제 1 실시예에 기술된 것과 유사한 것들일 수 있다. 표면 개질된 질화붕소(35)와 관련하여서는 제1 실시예를 참고하기로 한다.

[0078] 상기 열전도성층(30)에서 다중 실란으로 표면 개질된 질화붕소(35)의 함량은 약 0.1 중량% 내지 약 60 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 30 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 5 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 10 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 20 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 30 중량%, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%, 약 5 중량% 내지 약 20 중량%, 약 5 중량% 내지 약 30 중량%, 약 10 중량% 내지 약 20 중량%, 약 10 중량% 내지 약 30 중량%, 또는 약 20 중량% 내지 약 30 중량%일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0079] 상기 열전도성층(30)의 두께는 상기 질화붕소(35)의 두께에 비해 클 수 있다. 앞서 설명한 바와 같이, 상기 질화붕소(35)는 육각형의 메쉬층, 또는 다수의 메쉬층들이 적층된 구조를 가질 수 있다. 다시 말해서, 질화붕소(35)는 하나 또는 적층된 둘 이상의 판들을 구비하는 판상형의 입자일 수 있는데, 상기 질화붕소(35)의 메쉬층의 표면에 해당하는 상하부 면들 중 하나는 상기 전도성 와이어(10)의 표면을 바라보도록 배치될 수 있다. 다시 말해서, 상기 질화붕소(35)의 판상면이 상기 전도성 와이어(10)의 표면과 이루는 각(θ_1)은 상기 질화붕소(35)의 판상면이 상기 전도성 와이어(10)의 표면에 수직한 수선과 이루는 각(θ_2)에 비해 작을 수 있다. 이 경우, 질화붕소(35)는 상기 열전도성층(30) 내에서 누워있는 배치를 가질 수 있어 질화붕소들(35) 사이의 중첩도가 향상될 수 있으므로 열전도성을 증가시킬 수 있다. 나아가, 상기 질화붕소(35)의 판상면은 상기 전도성 와이어(10)의 표면과 평행하게 배치될 수 있다.

- [0080] 한편, 상기 코팅층을 건조 및 경화하는 단계에서, 열에 의해 발생한 주변의 급격한 열운동에 의해 상기 질화붕소(35)의 분산성이 저하될 수 있으나, 다중 실란에 의해 표면 개질된 질화붕소(35)는 앞서 설명한 바와 같이 방향족기를 그의 표면 상에 보유하므로 방향족기를 갖는 고분자 매트릭스와 $\pi-\pi$ 상호작용에 의해 강하게 상호작용할 수 있기 때문에, 이 경우에도 높은 분산성을 유지할 수 있다.
- [0081] **에나멜 와이어 코일**
- [0082] 상술한 바와 같이 내부분방전성층(20)과 열전도성층(30), 또는 열전도성층(30)이 형성된 와이어를 보빈(bobbin) 상에 권취(winding)하여 코일을 제조할 수 있다.
- [0083] 이 후, 코일을 열처리, 예를 들어 약 150℃ 내지 250℃의 온도로 열처리할 수 있다. 이 때, 상기 와이어의 표면들은 서로 융착되어 와이어들 사이의 공기층을 제거할 수 있다. 구체적으로, 상기 열처리 과정에서 상기 열전도성층(30) 내의 고분자 매트릭스는, 권취되어 서로 인접하는 와이어들 사이에서 서로 융착될 수 있다. 이를 위해, 상기 고분자 매트릭스의 융점은 상기 열처리 온도에 비해 낮은 값을 갖도록, 상기 고분자 매트릭스를 구성하는 고분자를 선택하거나 또는 상기 열처리 온도를 조절할 수 있다.
- [0084] 이하, 본 발명의 이해를 돕기 위하여 바람직한 실험예(example)를 제시한다. 다만, 하기의 실험예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것일 뿐, 본 발명이 하기의 실험예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0085] [실험예들; Examples]
- [0086] **실란 표면 개질된 질화붕소와 폴리아미드이미드 복합체 제조**
- [0087] <실험예 1 : PN과 DN로 표면 개질된 질화붕소와 PAI 복합체 제조>
- [0088] 1L 용량의 유리병에 600ml의 N,N-디메틸포름아마이드 (N,N-Dimethylmethanamide, 이하, 'DMF'이라고 함)와 30g의 육방정 질화붕소를 넣고, 25℃의 온도 하에서 스테러바(stirrer bar)를 사용하여 30분간 혼합액을 형성하였다. 이후, 상기 혼합액을 혼(horn) 초음파기 내에 위치시키고 25℃의 온도 하에서 200와트의 초음파를 2시간 동안 가하여 육방정 질화붕소를 박리하였다.
- [0089] 이 후, 상기 혼합액에 N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]아닐린(N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]aniline, 이하, 'PN'이라고 함)을 3.21g 첨가하여 혼 초음파기 내에 위치시키고 70℃의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간 동안 가하여, PN 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.
- [0090] 여기에 N-[3-(트리메톡시실릴)프로필]에틸렌디아민(N-[3-(Trimethoxysilyl)propyl]ethylenediamine, 이하 'DN'이라고 함)을 3.084 g 첨가하여 혼 초음파기 내에 위치시키고 70℃의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간 동안 가하여, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.
- [0091] 결과물을 유리 필터 깔대기에 부은 다음 필터 상의 고형물에 DMF와 N-메틸-2-피페리돈 (N-Methyl-2-pyrrolidone, 이하 'NMP'이라고 함)을 3회 이상 분사하여 상기 고형물을 세척함으로써, 미반응된 실란을 제거하였다. 상기 세척된 고형물을 열풍 오븐에 넣고 120℃에서 24시간 동안 건조하여, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소의 분말을 수득하였다.
- [0092] 이 후, 폴리아미드이미드(이하, 'PAI'라고 함)가 33wt%로 분산된 NMP 용액에, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소를 PAI와 표면 개질된 육방정 질화붕소의 중량합 대비 표면 개질된 육방정 질화붕소가 20wt% 혹은 60wt%의 함량(PAI 100 중량부에 대해 표면 개질된 육방정 질화붕소가 25 중량부 혹은 150 중량부)을 갖도록 첨가하였다. 이 후, 배스 초음파기 내에 위치시키고 100와트의 초음파를 30분 동안 가하고, 테프론(teflon) 몰드에서 몰딩하였다. 상기 몰딩된 혼합물을 열풍 오븐 내에서 240℃, 240분간 경화하여 펠렛(pellet) 형태의 PN과 DN으로 표면 개질된 질화붕소와 폴리아미드이미드의 복합체를 얻었다.
- [0093] <비교예 1 : 질화붕소를 함유하지 않는 PAI 샘플 제조>
- [0094] PAI가 33wt%로 분산된 NMP 용액을 테프론 몰드에서 몰딩한 후, 열풍 오븐 내에서 240℃, 240분간 경화하여 PAI 펠렛을 얻었다.
- [0095] <비교예 2 : 표면 개질되지 않은 질화붕소와 PAI 복합체 제조>
- [0096] 표면 개질되지 않은 육방정 질화붕소를, PAI가 33wt%로 분산된 NMP 용액에, PAI와 육방정 질화붕소의 중량합 대비 육방정 질화붕소가 20wt% 혹은 60wt%의 함량(PAI 100 중량부에 대해 육방정 질화붕소가 25 중량부 혹은 150 중량부)을 갖도록 첨가한 후, 테프론 몰드에서 몰딩하였다. 상기 몰딩된 혼합물을 열풍 오븐 내에서 240℃,

240분간 경화하여 펠렛 형태의 표면 개질되지 않은 질화붕소와 PAI의 복합체를 얻었다.

[0097] <비교예 3 : TE로 표면 개질된 질화붕소와 PAI 복합체 제조>

[0098] 1L 용량의 유리병에 600ml의 DMF와 30g의 육방정 질화붕소를 넣고, 25 °C의 온도 하에서 스티러바를 사용하여 30분간 혼합액을 형성하였다. 이 후, 상기 혼합액을 혼 초음파기 내에 위치시키고 25 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 2시간 동안 가하여 육방정 질화붕소를 박리하였다. 이 후, 상기 혼합액에 TE를 3.21g 첨가하여 혼 초음파기 내에 위치시키고 70 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간 동안 가하여, TE로 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.

[0099] 여기에 결과물을 유리 필터 깔대기에 부은 다음 필터 상의 고형물에 DMF와 NMP를 3회 이상 분사하여 상기 고형물을 세척함으로써, 미반응된 실란을 제거하였다. 상기 세척된 고형물을 열풍 오븐에 넣고 120°C에서 24시간 동안 건조하여, TE로 표면 개질된 육방정 질화붕소의 분말을 수득하였다.

[0100] 이 후, TE로 표면 개질된 육방정 질화붕소를, PAI가 33wt%로 분산된 NMP 용액에, PAI와 표면 개질된 육방정 질화붕소의 중량합 대비 표면 개질된 육방정 질화붕소가 20wt% 혹은 60wt%의 함량(PAI 100 중량부에 대해 표면 개질된 육방정 질화붕소가 25 중량부 혹은 150 중량부)을 갖도록 첨가하였다. 이 후, 배스 초음파기 내에 위치시키고 100와트의 초음파를 30분 동안 가하고, 테프론(teflon) 몰드에서 몰딩하였다. 상기 몰딩된 혼합물을 열풍 오븐 내에서 240°C, 240분간 경화하여 펠렛 형태의 TE로 표면 개질된 질화붕소와 폴리아미드이미드의 복합체를 얻었다.

[0101] <비교예 4 : PN로 표면 개질된 질화붕소와 PAI 복합체 제조>

[0102] TE 대신에 PN을 3.21g 사용하는 것을 제외하고는 비교예 3과 동일한 방법을 사용하여, 펠렛 형태의 PN으로 표면 개질된 질화붕소와 PAI의 복합체를 얻었다.

[0103] <비교예 5 : DN로 표면 개질된 질화붕소와 PAI 복합체 제조>

[0104] TE 대신에 DN을 3.21g 사용하는 것을 제외하고는 비교예 3과 동일한 방법을 사용하여, 펠렛 형태의 DN으로 표면 개질된 질화붕소와 PAI의 복합체를 얻었다.

[0105] 하기 표 1은 실험예들 1 및 비교예들 1 내지 5에 따른 질화붕소-PAI 복합체 펠렛 또는 PAI 펠렛의 열전도도를 나타낸다. 이 때, 열전도도는 레이저 플래시(laser flash)법을 사용하여 측정하였다.

표 1

	질화붕소 함유여부	질화붕소 표면 개질제 종류	열전도도 (W/mK), (질화붕소 함량: 20wt%)	열전도도 (W/mK), (질화붕소 함량: 60wt%)
실험예 1	○	PN & DN	0.64	2.56
비교예 1	-		0.30	
비교예 2	○	-	0.44	0.99
비교예 3	○	TE	0.57	1.97
비교예 4	○	PN	0.57	2.10
비교예 5	○	DN	0.61	2.17
PN: N-[3-trimethoxysilyl)propyl]aniline TE: (3-glycidyloxypropyl)trimethoxysilane DN: N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]ethylenediamine PAI: Polyamide-imide				

[0107] 상기 표 1을 참조하면, 다중 실란 구체적으로, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 실험예 1에 따른 질화붕소-PAI 복합체는 질화붕소를 함유하지 않거나(비교예 1), 질화붕소가 표면개질되지 않았거나(비교예 2), 또는 질화붕소가 한 종류의 실란으로 개질된(비교예 3, 비교예 4, 비교예 5) 경우에 비해 열전도도의 증가가 우수한 것을 알 수 있다.

[0108] 도 3a는 실험예 1에 따른 질화붕소-PAI 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이고, 도 3b는 비교예 2에 따른 질화붕소-PAI 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이다.

[0109] 도 3a 및 도 3b를 참조하면, 표면 개질되지 않은 질화붕소가 함유된 질화붕소-PAI 복합체(비교예 2, 도 3b)는 질화붕소가 완전히 분산되지 않음에 따라 질화붕소들 사이에 공극이 PAI 수지에 의해 채워지지 않은 것을 알 수

있다. 한편, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 실험에 1에 따른 질화붕소-PAI 복합체(도 3a)는 공극이 거의 없는 파단면을 나타냄을 알 수 있다.

[0110] 상기 도 3a 및 도 3b, 그리고 표 1에 따른 결과로부터, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 질화붕소는 PAI 매트릭스 내에서의 분산정도가 다른 경우들에 비해 더 우수하다는 것을 알 수 있다.

[0111] **실란 표면 개질된 질화붕소와 에폭시수지 복합체 제조**

[0112] <실험예 2 : PN과 DN으로 표면 개질된 질화붕소와 에폭시 복합체 제조>

[0113] 1L 용량의 유리병에 600ml의 DMF와 30g의 육방정 질화붕소를 넣고, 25 °C의 온도 하에서 스테러바(stirrer bar)를 사용하여 30분간 혼합액을 형성하였다. 이 후, 상기 혼합액을 혼 초음파기 내에 위치시키고 25 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 2시간 동안 가하여 육방정 질화붕소를 박리하였다. 이 후, 상기 혼합액에 PN을 3.21 g첨가하여 혼 초음파기 내에 위치시키고 70 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간 동안 가하여, PN 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.

[0114] 여기에 DN을 3.084 g 첨가하여 혼 초음파기 내에 위치 시키고 70 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간동안 가하여, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.

[0115] 여기에 결과물을 유리 필터 깔대기에 부은 다음 필터 상의 고형물에 DMF와 NMP를 3회 이상 분사하여 상기 고형물을 세척함으로써, 미반응된 실란을 제거하였다. 상기 세척된 고형물을 열풍 오븐에 넣고 120°C에서 24시간 동안 건조하여, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소의 분말을 수득하였다.

[0116] 이 후, YD-128 에폭시(국도화학사)와 폴리옥시알킬렌아민계 경화제인 제프아민(Jeffamine, Huntsman사)를 5:3의 비로 섞은 후, PN과 DN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소를 20wt%의 농도(YD-128 에폭시와 제프아민의 중량합 100 중량부에 대해 표면 개질된 육방정 질화붕소가 25 중량부)로 첨가한 후 골고루 섞어 혼합액을 만든다. 이 혼합액을 테프론 몰드에 붓고 열풍 오븐 내에서 130°C, 60분간 경화하여 펠렛 형태의 PN과 DN으로 표면 개질된 질화붕소와 에폭시의 복합체를 얻었다.

[0117] <비교예 6 : 질화붕소를 함유하지 않는 에폭시 샘플 제조>

[0118] YD-128 에폭시(국도화학사)와 경화제인 제프아민(Jeffamine, Huntsman사)를 5:3의 비로 섞은 혼합액을 테프론 몰드에서 몰딩한 후, 열풍 오븐 내에서 130°C, 60분간 경화하여 에폭시 펠렛을 얻었다.

[0119] <비교예 7 : : 표면 개질되지 않은 질화붕소와 에폭시 복합체 제조>

[0120] 표면 개질되지 않은 육방정 질화붕소를, YD-128 에폭시(국도화학사)와 경화제인 제프아민(Jeffamine, Huntsman사)를 5:3의 비로 섞은 혼합액에, 20wt%의 농도(YD-128 에폭시와 제프아민의 중량합 100 중량부에 대해 육방정 질화붕소가 25 중량부)로 첨가한 후, 테프론 몰드에서 몰딩하였다. 상기 몰딩된 혼합물을 열풍 오븐 내에서 130°C, 60분간 경화하여 펠렛 형태의 표면 개질되지 않은 질화붕소와 에폭시 복합체를 얻었다.

[0121] <비교예 8 : PN으로 표면 개질된 질화붕소와 에폭시 복합체 제조>

[0122] 1L 용량의 유리병에 600ml의 DMF와 30g의 육방정 질화붕소를 넣고, 25 °C의 온도 하에서 스테러바를 사용하여 30분간 혼합액을 형성하였다. 이 후, 상기 혼합액을 혼 초음파기 내에 위치시키고 25 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 2시간 동안 가하여 육방정 질화붕소를 박리하였다. 이 후, 상기 혼합액에 PN을 3.21g 첨가하여 혼 초음파기 내에 위치시키고 70 °C의 온도 하에서 200와트의 초음파를 3시간 동안 가하여, PN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소-DMF 혼합액을 얻었다.

[0123] 여기에 결과물을 유리 필터 깔대기에 부은 다음 필터 상의 고형물에 DMF와 NMP를 3회 이상 분사하여 상기 고형물을 세척함으로써, 미반응된 실란을 제거하였다. 상기 세척된 고형물을 열풍 오븐에 넣고 120°C에서 24시간 동안 건조하여, PN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소의 분말을 수득하였다.

[0124] 이 후, PN으로 표면 개질된 육방정 질화붕소를, YD-128 에폭시(국도화학사)와 경화제인 제프아민(Jeffamine, Huntsman사)를 5:3의 비로 섞은 혼합액에, 20wt%의 농도(YD-128 에폭시와 제프아민의 중량합 100 중량부에 대해 표면 개질된 육방정 질화붕소가 25 중량부)로 첨가한 후, 테프론 몰드에서 몰딩하였다. 상기 몰딩된 혼합물을 열풍 오븐 내에서 130°C, 60분간 경화하여 펠렛 형태의 PN으로 표면 개질된 질화붕소와 에폭시의 복합체를 얻었다.

[0125] 하기 표 2는 실험예 2 및 비교예들 6 내지 8에 따른 질화붕소-에폭시 복합체 펠렛 또는 에폭시 펠렛의 열전도도를 나타낸다. 이 때, 열전도도는 레이저 플래쉬(laser flash)법을 사용하여 측정하였다.

표 2

[0126]

	질화붕소 함유여부	질화붕소 표면 개질제 종류	열전도도 (W/mK), (질 화붕소 함량: 20wt%)
실험예 2	○	PN & DN	0.48
비교예 6	-	-	0.21
비교예 7	○	-	0.42
비교예 8	○	PN	0.46
PN: N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]aniline			
DN: N-[3-(trimethoxysilyl)propyl]ethylenediamine			

[0127] 상기 표 2를 참조하면, 다중 실란 구체적으로, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 실험예 2에 따른 질화붕소-에폭시 복합체는 질화붕소를 함유하지 않거나(비교예 6), 질화붕소가 표면개질되지 않았거나(비교예 7), 또는 질화붕소가 한 종류의 실란으로 개질된(비교예 8) 경우에 비해 열전도도의 증가가 우수한 것을 알 수 있다.

[0128] 도 4a는 실험예 2에 따른 질화붕소-에폭시 복합체의 파단면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진이고, 도 4b는 비교예 7에 따른 질화붕소-에폭시 복합체의 파단면을 주사현미경으로 관찰한 사진이다.

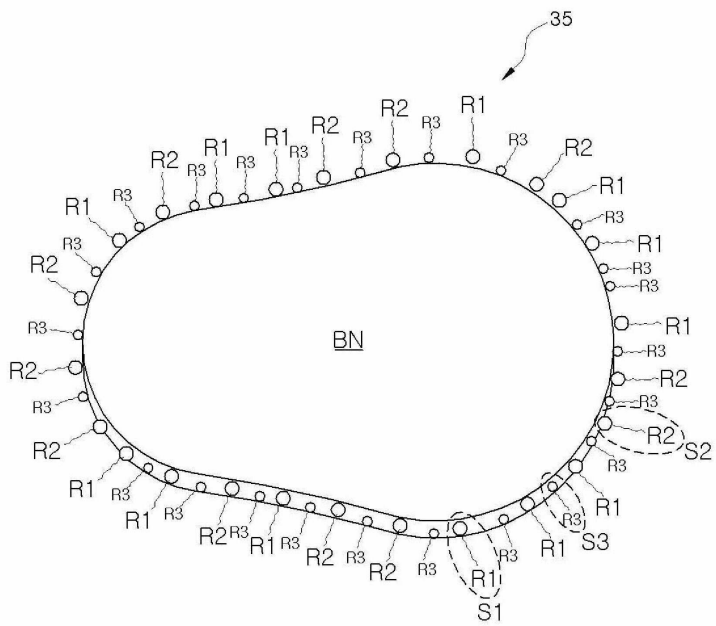
[0129] 도 4a 및 도 4b를 참조하면, 표면 개질되지 않은 질화붕소가 함유된 질화붕소-에폭시 복합체(비교예 7, 도 4b)는 질화붕소가 완전히 분산되지 않음에 따라 질화붕소들 사이에 공극이 에폭시 수지에 의해 채워지지 않은 것을 알 수 있다. 한편, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 실험예 2에 따른 질화붕소-에폭시 복합체(도 4a)는 공극이 거의 없는 파단면을 나타냄을 알 수 있다.

[0130] 상기 도 4a 및 도 4b, 그리고 표 2에 따른 결과로부터, 말단기능기로서 아민기를 갖는 실란(DN)과 말단기능기로서 페닐기를 갖는 실란(PN)으로 표면 개질된 질화붕소는 에폭시 매트릭스 내에서의 분산정도가 다른 경우들에 비해 더 우수하다는 것을 알 수 있다.

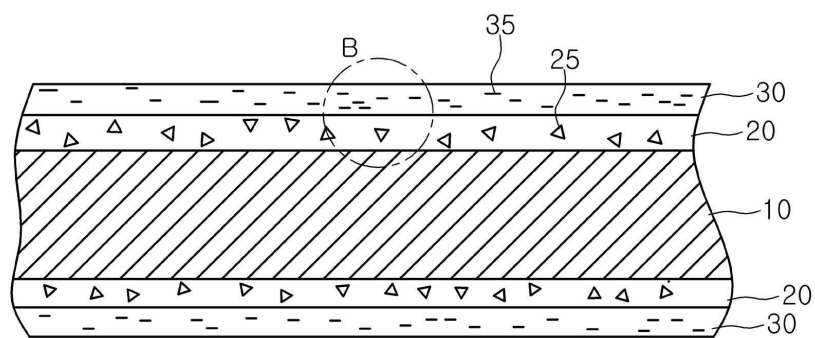
[0131] 이상, 본 발명을 바람직한 실시예를 들어 상세하게 설명하였으나, 본 발명은 상기 실시예에 한정되지 않고, 본 발명의 기술적 사상 및 범위 내에서 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의하여 여러가지 변형 및 변경이 가능하다.

도면

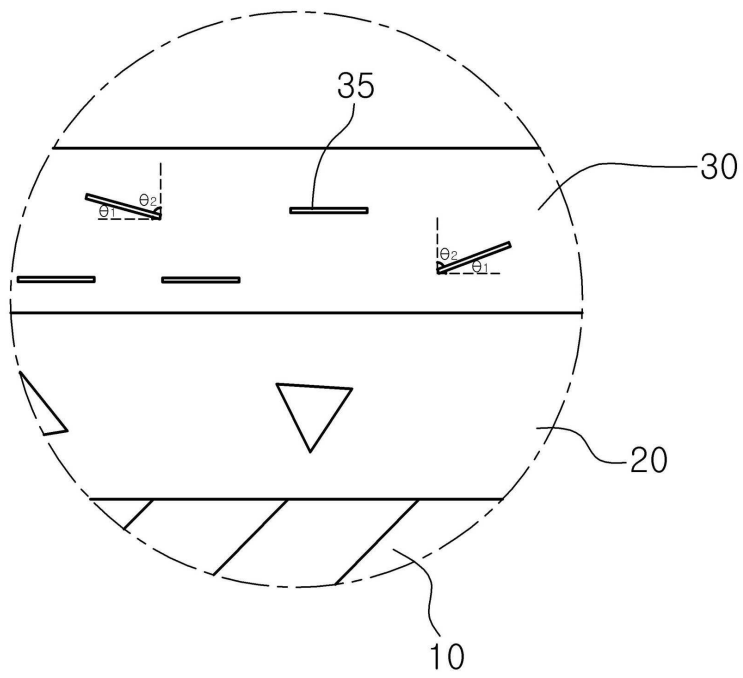
도면1



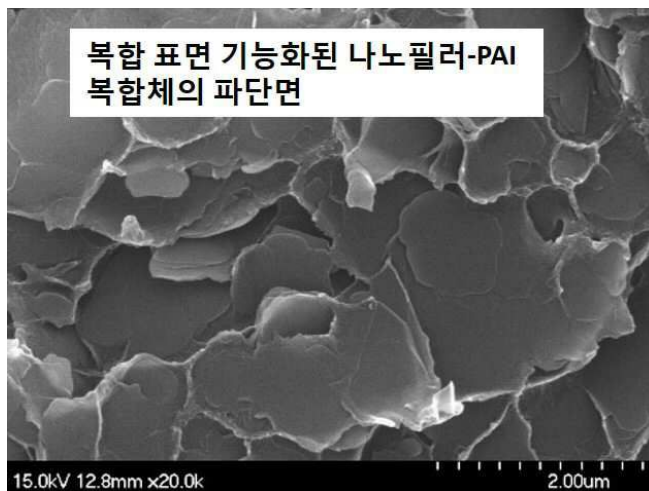
도면 2a



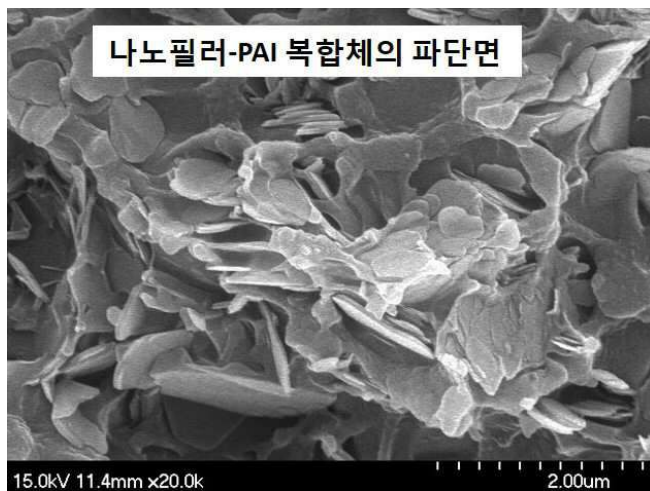
도면2b



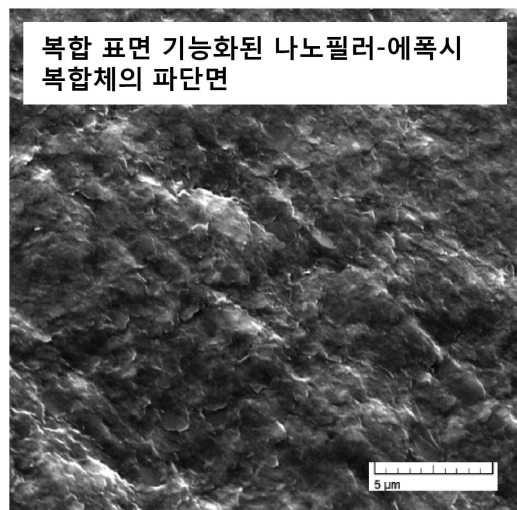
도면3a



도면3b



도면4a



도면4b

