



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2011-0048513  
(43) 공개일자 2011년05월11일

(51) Int. Cl.

*C08G 18/10* (2006.01) *C08G 18/32* (2006.01)  
*C09D 175/02* (2006.01) *H02K 1/00* (2006.01)

(21) 출원번호 10-2011-7002323

(22) 출원일자(국제출원일자) 2009년07월17일  
심사청구일자 없음

(85) 번역문제출일자 2011년01월28일

(86) 국제출원번호 PCT/EP2009/005212

(87) 국제공개번호 WO 2010/012389  
국제공개일자 2010년02월04일

(30) 우선권주장  
08013648.4 2008년07월30일  
유럽특허청(EPO)(EP)

(71) 출원인

바이엘 머티리얼사이언스 아게

독일, 51368 레버쿠젠, 카이저-빌헬름 알레

(72) 발명자

엔닝거, 베르너

독일 50677 쾰른 아이펠플라츠 9

되르, 세바스티안

독일 40593 뒤셀도르프 안게르스트라쎄 99

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

양영준, 위혜숙

전체 청구항 수 : 총 12 항

(54) 폴리이소시아네이트계 중합체 요소를 갖는 전기기계 변환기

(57) 요약

본 발명은 전기기계 변환기, 구체적으로 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물과 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물을 포함하는 반응 혼합물로부터 얻을 수 있는 중합체 요소를 갖는 전기기계 센서, 액츄에이터 및/또는 발전기에 관한 것이다. 또한, 본 발명은 이와 같은 유형의 전기기계 변환기를 제조하는 방법, 및 이와 같은 유형의 중합체 요소를 전기기계 소자로서 사용하는 용도에 관한 것이다. 나아가, 본 발명은 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 포함하는 전자 및/또는 전기 장치, 그리고 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 전자 및/또는 전기 장치에 사용하는 용도에 관한 것이다.

(72) 발명자

**마그너, 요아힘**

독일 51061 쾰른 켐멜바이스스트라쎄 135

**외홀러, 부르크하르트**

독일 34289 치렌베르크 카스타닌베르크 5베

**헤크로트, 하이케**

독일 51519 오펜탈 춤 하넨베르크 30

**마트너, 마티아스**

독일 41464 노이쎄 뤼트초브스트라쎄 16하

---

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

2개 이상의 전극 및 하나 이상의 중합체 요소를 포함하고, 상기 중합체 요소가 2개의 전극 사이에 배치되며,

- A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물; 및  
B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물

성분을 포함하는 반응 혼합물로부터 상기 중합체 요소를 얻을 수 있는 것을 특징으로 하는, 전기기계 변환기.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 센서 및/또는 액츄에이터 및/또는 발전기인 것을 특징으로 하는 변환기.

### 청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 성분 A)가 이소시아누레이트기 및/또는 우레탄기를 함유하는 폴리이소시아네이트 또는 이소시아누레이트기 및/또는 우레탄기를 함유하는 폴리이소시아네이트 예비중합체, 또는 이들의 혼합물인 것을 특징으로 하는 변환기.

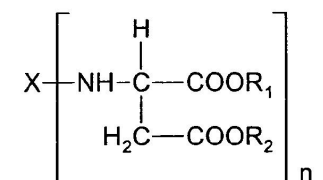
### 청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 성분 B)가 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르인 것을 특징으로 하는 변환기.

### 청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 성분 B)가 하기 화학식 I로 표시되는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르인 것을 특징으로 하는 변환기:

[화학식 I]



상기 식에서, X는 n가 아민으로부터 2개 이상의 1급 아미노기를 제거함으로써 얻어지는 n가 유기 잔기를 나타내고;

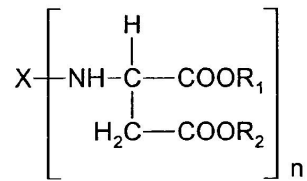
R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 체레비티노프(Tserevitinov) 활성 수소를 갖지 않는 유사하거나 상이한 유기 잔기를 나타내고;

n은 2 이상의 정수를 나타낸다.

### 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 성분 B)가 하기 화학식 I로 표시되는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르인 것을 특징으로 하는 변환기:

[화학식 I]



상기 식에서, X는 1,4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 2-메틸-1,5-디아미노펜탄, 2,2,4- 또는 2,4,4-트리메틸-1,6-디아미노헥산으로부터 아미노기를 제거함으로써 얻어지는 2가 유기 잔기를 나타내고;

R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 각각 서로 독립적으로 탄소 원자 수가 1 내지 10개인 직쇄 또는 분지쇄 알킬기를 나타내고;

n은 2를 나타낸다.

#### 청구항 7

- 2개 이상의 전극을 제공하고,

- A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물, 및

B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물

성분을 포함하는 반응 혼합물의 전환에 의해서 중합체 요소를 제공하고,

- 상기 중합체 요소를 두 전극 사이에 배치하는 것

을 포함하는, 제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따르는 전기기계 변환기의 제조 방법.

#### 청구항 8

제7항에 있어서, 상기 반응 혼합물을 하나 이상의 전극상에 적용함으로써 상기 중합체 요소를 제공하는 것을 특징으로 하는 제조 방법.

#### 청구항 9

제7항 또는 제8항에 있어서, 상기 반응 혼합물을 건조 및/또는 어니일링하는 것을 특징으로 하는 방법.

#### 청구항 10

A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물, 및

B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물

성분을 포함하는 반응 혼합물로부터 얻을 수 있는 중합체 요소의, 전기기계 요소로서의 용도.

#### 청구항 11

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따르는 전기기계 변환기를 포함하는 전자 및/또는 전기 장치.

#### 청구항 12

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따르는 전기기계 변환기의, 전자 및/또는 전기 장치에 있어서의 용도.

### 명세서

### 기술분야

본 발명은 전기기계 변환기, 구체적으로 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물과 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물을 포함하는 반응 혼합물로부터 얻을 수 있는 중합체 요소를 갖는 전기기계 센서, 액츄에이터 및/또는 발전기에 관한 것이다. 또한, 본 발명은 이와 같은 유형의 전기기계 변환기를 제조하는 방법, 및 이와 같은 유형의 중합체 요소를 액츄에이터, 센서 및/또는 발전

[0001]

기로써 사용하는 용도에 관한 것이다. 나아가, 본 발명은 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 포함하는 전자 및/또는 전기 장치, 그리고 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 전자 및/또는 전기 장치에 사용하는 용도에 관한 것이다.

## 배경 기술

- [0002] 전기기계 변환기는 전기 에너지를 기계적 에너지로, 그리고 기계적 에너지를 전기 에너지로 변환시킨다. 그러므로, 전자기 변환기는 센서, 액추에이터 및/또는 발전기로서 사용될 수 있다.
- [0003] 이와 같은 변환기의 기본적인 구조는 양면상에서 전극으로 피복된 전기활성 중합체 층을 주성분으로 한다. 이러한 맥락에서, '전기활성 중합체'라는 표현은 중합체에 부하된 전압에 의존하는 방식으로 그 부피 및/또는 형태를 변화시키는 중합체, 및/또는 부피 및/또는 형태 변화의 결과로서 전압을 발생시킬 수 있는 중합체를 의미하는 것으로 이해된다.
- [0004] WO 01/06575 A1호는 예컨대 실리콘 엘라스토머, 아크릴 엘라스토머, 폴리우레탄, 열가소성 엘라스토머, 폴리테트라플루오로에틸렌 함유 공중합체, 플루오로엘라스토머, 및 실리콘기와 아크릴기를 포함하는 중합체에 의해 전술한 바와 같은 특성을 나타낼 수 있다고 개시하고 있다.
- [0005] 또한, EP 1 081 171 A2호 및 DE-A 102 46 708 A1호를 통해서, 폴리우레탄 예비중합체를 아스파르트산 에스테르에 의해서 가교시킬 수 있다는 것이 알려져 있다.
- [0006] 그러나, 종래 전기기계 변환기에 사용되었던 중합체들은 기계적 특성과 다른 특성이 열등한 경우가 많으며, 구체적으로 변형(strain) 특성이 나쁘고, 절연 효과가 적으며, 특히 파괴 강도(breakdown field strength)가 낮고 전기 전도도가 높으며 가공성이 열악하고 재료 비용이 많이 든다. 특히, 전기기계 변환기에 통상 사용되는 중합체, 예컨대 실리콘에 의해서는 한 가지 재료에서 바람직한 특성들의 조합을 이룰 수가 없다.

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

- [0007] 그러므로, 본 발명의 목적은 공지의 전기기계 변환기의 단점들을 극복하는 전기기계 변환기를 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

- [0008] 본 발명의 범위내에서, 상기 목적은 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물과 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물, 특히 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르를 포함하는 반응 혼합물로부터 얻을 수 있는 중합체 요소에 의해 달성되는 것으로 밝혀졌다. 이러한 맥락에서, 본 발명의 범위내에서 용어 '폴리이소시아네이트' 및 '폴리이소시아네이트 예비중합체'는 2개 이상의 유리된 이소시아네이트기를 갖는 화합물을 의미하는 것으로 이해된다. 다시 말해서, '폴리이소시아네이트' 및 '폴리이소시아네이트 예비중합체'는 적어도 2개의 이소시아네이트 관능기를 갖는 화합물을 의미하는 것으로 이해된다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0009] 따라서, 본 발명은 2개 이상의 전극 및 하나 이상의 중합체 요소를 포함하는 전기기계 변환기를 제공하며, 여기서 상기 중합체 요소는 두 전극 사이에 특히 하나 이상의 전극과 접촉하여 배치되고, 상기 중합체 요소는 본 발명에 따라서, 예를 들면 하기 성분 A) 및 B)를 포함하는 필름-형성 반응 혼합물로부터 얻을 수 있다:
- [0010] A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물; 및
- [0011] B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물.
- [0012] 기계적 하중이 이와 같은 유형의 변환기상에 발휘될 경우에, 변환기는 예를 들면 그 두께를 따라서 변형되어, 강한 전기적인 신호가 전극에서 검출될 수 있다. 따라서, 기계적인 에너지가 전기 에너지로 전환된다. 그러므로, 본 발명에 의한 변환기는 발전기 및 센서로서 사용될 수 있다.
- [0013] 반대되는 효과, 즉, 전기 에너지의 기계 에너지로의 전환을 이용함으로써, 본 발명에 의한 변환기는 다른 한편으로 액추에이터로서도 작용할 수 있다.

- [0014] 본 발명의 실시양태의 범위내에서, 중합체 요소는 전극이 중합체 요소의 대향하는 측면상에서 중합체 요소와 인접하도록 두 전극 사이에 배치된다. 예를 들면, 중합체 요소는 양 측면상에서 전극으로 피복될 수 있다.
- [0015] 또한, 본 발명은 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 제조하는 방법을 제공하며, 본 발명의 방법에서는,
- [0016] - 2개 이상의 전극을 제공하고,
- [0017] - A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물, 및
- [0018] B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물을 포함하는 반응 혼합물의 전환에 의해서 중합체 요소를 제공하며,
- [0019] - 상기 중합체 요소를 두 전극 사이에 배치한다.
- [0020] 이와 관련하여 구체적으로 상기 중합체 요소는 그것이 하나 이상의 전극과 접촉하는 방식으로 두 전극 사이에 배치될 수 있다.
- [0021] 본 발명에 의한 방법의 바람직한 실시양태의 범위내에서, 상기 중합체 요소는 상기 반응 혼합물을 하나 이상의 전극상에 적용함으로써 제공된다. 이러한 적용 과정은 예컨대 나이프 코팅, 브러싱(brushing), 캐스팅, 원심분리, 분무 또는 압출에 의해서 수행할 수 있다. 그러나, 본 발명의 범위내에서, 전극과 중합체 요소를 별도의 단계에서 제조한 다음에 이들을 조립할 수도 있다.
- [0022] 본 발명에 의한 방법의 바람직한 실시양태의 범위내에서, 반응 혼합물을 건조 및/또는 어니일링(annealing)한다. 여기서, 건조는 0℃ 이상 내지 200℃ 이하 범위의 온도에서, 예를 들면 0.1분 이상 내지 48 시간 이하, 특히 6 시간 이상 내지 18 시간 이하의 시간동안 수행할 수 있다. 어니일링은 예컨대 80℃ 이상 250℃ 이하 범위의 온도에서 예를 들면 0.1분 이상 내지 24 시간 이하의 시간 동안 수행할 수 있다.
- [0023] 또한, 본 발명은 하기 성분 A)와 B)를 포함하는 반응 혼합물로부터 얻을 수 있는 중합체 요소를 전기기계 요소로서, 예컨대 센서, 액추에이터 및/또는 발전기로서, 특히 센서, 액추에이터 및/또는 발전기내의 전기기계 요소로서 사용하는 용도를 제공한다:
- [0024] A) 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물; 및
- [0025] B) 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물.
- [0026] 이외에도, 본 발명은 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 포함하는 전자 및/또는 전기 장치, 특히 모듈, 자동 기계, 기기 또는 부품을 제공한다.
- [0027] 나아가, 본 발명은 본 발명에 의한 전기기계 변환기를 전자 및/또는 전기 장치, 특히 모듈, 자동 기계, 기기 또는 부품에 사용하는 용도에 관한 것이다.
- [0028] 본 발명의 범위내에서, 상기 중합체 요소는 중합체 층, 특히 중합체 필름, 중합체 시트 또는 중합체 코팅일 수 있다. 예를 들면, 중합체 층의 층 두께는 0.1  $\mu\text{m}$  이상 내지 1500  $\mu\text{m}$  이하 범위, 예를 들면 1  $\mu\text{m}$  이상 내지 500  $\mu\text{m}$  이하 범위, 구체적으로 5  $\mu\text{m}$  이상 내지 200  $\mu\text{m}$  이하 범위, 바람직하게는 5  $\mu\text{m}$  이상 내지 100  $\mu\text{m}$  이하 범위일 수 있다.
- [0029] **성분 A)**
- [0030] 본 발명의 범위내에서, 성분 A)는 원칙적으로 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이들의 혼합물일 수 있다. 예를 들면, 성분 A)는 이소시아나이드기 및/또는 우레탄기를 함유하는 폴리이소시아네이트 또는 이소시아나이드기 및/또는 우레탄기를 함유하는 폴리이소시아네이트 예비중합체, 또는 이들의 혼합물일 수 있다.
- [0031] 폴리이소시아네이트 A)로서 적당한 것의 예로서는, 1,4-부틸렌 디이소시아네이트, 1,6-헥사메틸렌 디이소시아네이트(HDI), 이소포론 디이소시아네이트(IPDI), 2,2,4 및/또는 2,4,4-트리메틸헥사메틸렌 디이소시아네이트, 비스(4,4'-이소시아네이트스클로헥실)메탄 이성질체들 또는 임의의 이성질체 함량을 갖는 이것의 혼합물, 1,4-스클로헥실렌 디이소시아네이트, 4-이소시아네이트메틸-1,8-옥탄 디이소시아네이트(노난 트리이소시아네이트), 1,4-페닐렌 디이소시아네이트, 2,4- 및/또는 2,6-톨루일렌 디이소시아네이트, 1,5-나프틸렌 디이소시아네이트, 2,2'- 및/또는 2,4'- 및/또는 4,4'-디페닐메탄 디이소시아네이트, 1,3- 및/또는 1,4-비스(2-이소시아네이트-프로프-2-일)벤젠(TMXDI), 1,3-비스(이소시아네이트메틸)벤젠(XDI), 1 내지 8개의 탄소 원자를 갖는 알킬기를 가

진 알킬-2,6-디이소시아네이트헥사노에이트(리신 디이소시아네이트) 및 이들의 혼합물을 들 수 있다.

- [0032] 전술한 폴리이소시아네이트 이외에도, 관능기 수가 2 이상인, 우레트디온, 이소시아누레이트, 우레탄, 알로파네이트, 비우레트, 이미노옥사디아진디온 또는 옥사디아진트리온 구조를 갖는 변형된 디이소시아네이트, 및 이들의 혼합물도 비례해서 사용할 수 있다.
- [0033] 전적으로 지방족만으로 또는 시클로지방족만으로 결합된 이소시아네이트 기를 갖는 전술한 유형의 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 혼합물, 또는 이들의 혼합물도 바람직하게 사용되며, 이 때 혼합물의 평균 NCO 관능기 수는 2 이상 내지 4 이하, 바람직하게는 2 이상 내지 2.6 이하, 특히 바람직하게는 2 이상 내지 2.4 이하이다.
- [0034] 헥사메틸렌 디이소시아네이트, 이소포론 디이소시아네이트 또는 비스(4,4'-이소시아네이트시클로헥실)메탄 이성질체들 및 전술한 바와 같은 디이소시아네이트류의 혼합물을 주성분으로 하는 폴리이소시아네이트를 성분 A)로서 사용하는 것이 특히 바람직하다.
- [0035] 또한, 성분 A)로서 사용될 수 있는 폴리이소시아네이트 예비중합체는 폴리이소시아네이트를 히드록시 관능기 함유, 구체적으로 중합체, 폴리올에 의해서, 임의로 촉매 및 보조 물질과 첨가 물질을 첨가하여 전환시킴으로써 얻을 수 있다.
- [0036] 히드록시 관능기 함유 중합체 폴리올은 예컨대 폴리에스테르 폴리올, 폴리아크릴레이트 폴리올, 폴리우레탄 폴리올, 폴리카보네이트 폴리올, 폴리에테르 폴리올, 폴리에스테르-폴리아크릴레이트 폴리올, 폴리우레탄-폴리아크릴레이트 폴리올, 폴리우레탄-폴리에스테르 폴리올, 폴리우레탄-폴리에테르 폴리올, 폴리우레탄-폴리카보네이트 폴리올 및/또는 폴리에스테르-폴리카보네이트 폴리올일 수 있다. 이들은 폴리이소시아네이트 예비중합체를 제조하기 위해서 단독으로 또는 상호간의 임의의 혼합물로 사용될 수 있다.
- [0037] 폴리이소시아네이트 예비중합체를 제조하기 위해서, 폴리이소시아네이트, 바람직하게는 디이소시아네이트를 일 반적으로 4:1 이상 내지 20:1 이하, 예를 들면 8:1의 NCO/OH 비율하에 폴리올을 사용해서 전환시킬 수 있다. 이어서, 미전환된 폴리이소시아네이트 부분을 분리 제거할 수 있다. 이를 위해서, 박막 증류법을 사용할 수 있으며, 이 방법에 의해 잔류하는 단량체가 적은, 예를 들면 잔류하는 단량체 함량이 1 중량% 이하, 바람직하게는 0.5 중량% 이하, 특히 바람직하게는 0.1 중량% 이하인 생성물을 얻는다. 이 때 반응 온도는 20℃ 이상 내지 120℃ 이하, 바람직하게는 60℃ 이상 내지 100℃ 이하일 수 있다. 안정화제, 예컨대 벤조일 클로라이드, 이소프탈로일 클로라이드, 디부틸 포스페이트, 3-클로로프로피온산 또는 메틸 토실레이트를 임의로 예비중합체를 제조하는 동안에 첨가할 수 있다.
- [0038] 폴리이소시아네이트 예비중합체를 제조하는데 적합한 폴리에스테르 폴리올은 디올 및 임의로 트리올과 테트라올, 및 디카르복실산 및 임의로 트리카르복실산 및 테트라카르복실산 또는 히드록시카르복실산 또는 락톤으로부터 형성된 중축합물일 수 있다. 유리된 폴리카르복실산 대신에, 상응하는 폴리카르복실산 무수물 또는 저급 알코올의 상응하는 폴리카르복실산 에스테르를 폴리에스테르를 제조하기 위해 사용할 수도 있다.
- [0039] 이러한 맥락에서 적합한 디올의 예로서는, 에틸렌 글리콜, 부틸렌 글리콜, 디에틸렌 글리콜, 트리에틸렌 글리콜, 폴리알킬렌 글리콜, 예컨대 폴리에틸렌 글리콜, 그리고 1,2-프로판디올, 1,3-프로판디올, 부탄디올(1,3), 부탄디올(1,4), 헥산디올(1,6) 및 이성질체, 네오펜틸 글리콜 또는 히드록시피발산 네오펜틸 글리콜 에스테르 또는 이들의 혼합물을 들 수 있으며, 이 중에서 헥산디올(1,6) 및 이성질체, 부탄디올(1,4), 네오펜틸 글리콜 및 히드록시피발산 네오펜틸 글리콜 에스테르가 바람직하다. 이러한 디올 이외에도, 폴리올, 예컨대 트리메틸올프로판, 글리세린, 에리트리톨, 펜타에리트리톨, 트리메틸올벤젠 또는 트리스히드록시에틸 이소시아누레이트 또는 이들의 혼합물도 사용할 수 있다.
- [0040] 여기서 디카르복실산으로서는, 프탈산, 이소프탈산, 테레프탈산, 테트라히드로프탈산, 헥사히드로프탈산, 시클로헥산디카르복실산, 아디프산, 아젤라인산, 세바신산, 글루타르산, 테트라클로로프탈산, 말레인산, 푸마르산, 이타콘산, 말론산, 수베린산, 2-메틸숙신산, 3,3-디에틸글루타르산 및/또는 2,2-디메틸숙신산을 사용할 수 있다. 상응하는 무수물도 산의 공급원으로서 사용할 수 있다.
- [0041] 에스테르화 시키고자 하는 폴리올의 평균 관능기 수가 2 이상이라는 전제하에, 추가로 벤조산 및 헥산카르복실산과 같은 모노카르복실산도 함께 사용할 수 있다.
- [0042] 바람직한 산은 전술한 유형의 지방족 또는 방향족 산이다. 여기서 특히 바람직한 것은 아디프산, 이소프탈산 및 프탈산이다.



- [0043] 말단 히드록시기를 가진 폴리에스테르 폴리올을 제조하는데 있어서 반응물질로서 함께 사용할 수 있는 히드록시 카르복실산의 예로서는, 히드록시카프로인산, 히드록시부티르산, 히드록시데칸산 또는 히드록시스테아르산 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다. 적당한 락톤은 카프로락톤, 부티로락톤 또는 이의 동족체 또는 혼합물이다. 카프로락톤이 바람직하다.
- [0044] 또한, 폴리아소시아네이트 예비중합체 A)를 제조하기 위해서, 히드록시기를 갖는 폴리카보네이트, 예컨대 폴리 카보네이트 폴리올, 바람직하게는 폴리카보네이트 디올을 사용할 수 있다. 예를 들면, 수 평균 분자량  $M_n$ 이 400 g/몰 이상 내지 8000 g/몰 이하, 바람직하게는 600 g/몰 이상 내지 3000 g/몰 이하인 당해 화합물을 사용할 수 있다. 이러한 화합물은 탄산 유도체, 예컨대 디페닐 카보네이트, 디메틸 카보네이트 또는 포스젠과 폴리올, 바람직하게는 디올의 반응에 의해 얻을 수 있다.
- [0045] 이러한 목적으로 사용하는데 적합한 디올의 예로서는, 에틸렌 글리콜, 1,2- 및 1,3-프로판디올, 1,3- 및 1,4-부탄디올, 1,6-헥산디올, 1,8-옥탄디올, 네오펜틸 글리콜, 1,4-비스히드록시메틸시클로헥산, 2-메틸-1,3-프로판디올, 2,2,4-트리메틸펜탄디올-1,3, 디프로필렌 글리콜, 폴리프로필렌 글리콜, 디부틸렌 글리콜, 폴리부틸렌 글리콜, 비스페놀 A 또는 락톤 변형된 진술한 유형의 디올 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다.
- [0046] 여기서 디올 성분은 헥산디올, 바람직하게는 1,6-헥산디올 및/또는 헥산디올 유도체를 40 중량% 이상 내지 100 중량% 이하로 함유하는 것이 바람직하다. 이와 같은 헥산디올 유도체는 헥산디올을 주성분으로 하며 말단 OH 기 이외에 에스테르기 또는 에테르기를 가질 수 있다. 이와 같은 유형의 유도체는 예컨대 헥산디올과 과량의 카프로락톤과의 반응에 의해, 또는 헥산디올 자체의 에테르화에 의해 디헥실렌 글리콜 또는 트리헥실렌 글리콜을 생성함으로써 얻을 수 있다. 이러한 성분 및 다른 성분들의 양은, 그 합계가 100 중량%를 넘지 않도록, 특히 100 중량%가 되도록 공지의 방식으로 본 발명의 범위내에서 선택된다.
- [0047] 히드록시기를 갖는 폴리카보네이트, 특히 폴리카보네이트 폴리올은 직쇄 구조를 갖는 것이 바람직하다.
- [0048] 또한, 폴리에테르 폴리올도 폴리아소시아네이트 예비중합체 A)를 제조하는데 사용할 수 있다. 적당한 폴리에테르 폴리올의 예로서는, 폴리테트라메틸렌 글리콜 폴리에테르, 예컨대 테트라히드로푸란의 양이온 개환 반응에 의한 중합을 통해서 얻을 수 있는 것을 들 수 있다. 또 다른 적당한 폴리에테르 폴리올은 스티렌 옥사이드, 에틸렌 옥사이드, 프로필렌 옥사이드, 부틸렌 옥사이드 및/또는 에피클로로히드린의 2관능기 또는 다관능기 출발 물질 분자로의 부가 반응 생성물을 들 수 있다. 예컨대 물, 부틸 디클리콜, 글리세린, 디에틸렌 글리콜 트리메틸올프로판, 프로필렌 글리콜, 소르비톨, 에틸렌디아민, 트리에탄올 아민 또는 1,4-부탄디올 또는 이들의 혼합물을 적당한 출발물질 분자로서 사용할 수 있다.
- [0049] 폴리아소시아네이트 예비중합체를 제조하는데 바람직한 성분은 폴리프로필렌 글리콜, 폴리테트라메틸렌 글리콜 폴리에테르 및 폴리카보네이트 폴리올 또는 이들의 혼합물이며, 폴리프로필렌 글리콜이 특히 바람직하다.
- [0050] 이와 관련하여, 수 평균 분자량  $M_n$ 이 400 g/몰 이상 내지 8000 g/몰 이하, 바람직하게는 400 g/몰 이상 내지 6000 g/몰 이하, 특히 바람직하게는 600 g/몰 이상 내지 3000 g/몰 이하인 중합체 폴리올을 사용할 수 있다. 이러한 중합체 폴리올의 OH 관능기 수는 1.5 이상 내지 6 이하인 것이 바람직하고, 1.8 이상 내지 3 이하인 것이 특히 바람직하며, 1.9 이상 내지 2.1 이하인 것이 매우 바람직하다.
- [0051] 진술한 바와 같은 중합체 폴리올 이외에도, 단쇄 폴리올을 폴리아소시아네이트 예비중합체 A)를 제조하는데 사용할 수 있다. 예를 들면, 에틸렌 글리콜, 디에틸렌 글리콜, 트리에틸렌 글리콜, 1,2-프로판디올, 1,3-프로판디올, 1,4-부탄디올, 1,3-부틸렌 글리콜, 시클로헥산디올, 1,4-시클로헥산디메탄올, 1,6-헥산디올, 네오펜틸 글리콜, 히드로퀴논디히드록시에틸 에테르, 비스페놀 A(2,2-비스(4-히드록시페닐)프로판), 수화된 비스페놀 A(2,2-비스(4-히드록시시클로헥실)프로판), 트리메틸올프로판, 트리메틸올에탄, 글리세린 또는 펜타에리트리톨 또는 이들의 혼합물을 사용할 수도 있다.
- [0052] 진술한 분자량 범위내의 에스테르 디올도 적합하며, 그 예로서는  $\alpha$ -히드록시부틸- $\epsilon$ -히드록시카프로인산 에스테르,  $\omega$ -히드록시헥실- $\gamma$ -히드록시부티르산 에스테르, 아디프산-( $\beta$ -히드록시에틸)에스테르 또는 테레프탈산 비스( $\beta$ -히드록시에틸)에스테르를 들 수 있다.
- [0053] 또한, 히드록시기를 함유하는 1관능기 이소시아네이트 반응성 화합물도 폴리아소시아네이트 예비중합체를 제조할 목적으로 사용할 수 있다. 이와 같은 1관능기 화합물의 예로서는, 에탄올, n-부탄올, 에틸렌 글리콜 모노부틸 에테르, 디에틸렌 글리콜 모노메틸 에테르, 디에틸렌 글리콜 모노부틸 에테르, 프로필렌 글리콜 모노메틸 에테르, 디프로필렌 글리콜 모노메틸 에테르, 트리프로필렌 글리콜 모노메틸 에테르, 디프로필렌 글리콜 모노프로



필 에테르, 프로필렌 글리콜 모노부틸 에테르, 디프로필렌 글리콜 모노부틸 에테르, 트리프로필렌 글리콜 모노부틸 에테르, 2-에틸헥산올, 1-옥탄올, 1-도데칸올 또는 1-헥사데칸올 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다.

[0054] 이외에도,  $\text{NH}_2$  관능기 함유 및/또는  $\text{NH}$  관능기 함유 성분을 폴리이소시아네이트 예비중합체 A)를 제조하기 위해서 사용할 수 있다.

[0055] 사슬 연장을 목적으로 사용하는데 적합한 성분들은 유기 디아민 또는 폴리아민이다. 예를 들면, 에틸렌 디아민, 1,2-디아미노프로판, 1,3-디아미노프로판, 1,4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 이소포론디아민, 2,2,4- 및 2,4,4-트리메틸헥사메틸렌디아민의 이성질체 혼합물, 2-메틸펜타메틸렌디아민, 디에틸렌트리아민, 디아미노디시클로헥실메탄 또는 디메틸에틸렌디아민 또는 이들의 혼합물이 적당하다.

[0056] 또한, 1급 아미노기 이외에 2급 아미노기도 갖거나, 아미노기(1급 또는 2급) 이외에 OH기도 갖는 화합물도 폴리이소시아네이트 예비중합체 A)를 제조하는데 사용할 수 있다. 이와 같은 화합물의 예로서는, 1급/2급 아민, 예컨대 디에탄올아민, 3-아미노-1-메틸아미노프로판, 3-아미노-1-에틸아미노프로판, 3-아미노-1-시클로헥실아미노프로판, 3-아미노-1-메틸아미노부탄, 알칸올아민, 예컨대 N-아미노에틸에탄올아민, 에탄올아민, 3-아미노프로판올, 네오펜탄올아민을 들 수 있다. 사슬 종결 용도에는, 통상적으로 이소시아네이트에 대하여 반응성이 있는 기를 갖는 아민을 사용하며, 그 예로서는 메탈아민, 에틸아민, 프로필아민, 부틸아민, 옥틸아민, 라우릴아민, 스테아릴아민, 이소노닐옥시프로필아민, 디메틸아민, 디에틸아민, 디프로필아민, 디부틸아민, N-메틸아미노프로필아민, 디에틸(메틸)아미노프로필아민, 모르폴린, 피페리딘 또는 이들의 적당한 치환된 유도체, 디(1급)아민 및 모노카르복실산으로부터 제조된 아미드아민, 디(1급)아민의 모노케팀, 1급/3급 아민, 예컨대 N,N-디메틸아미노프로필아민을 들 수 있다.

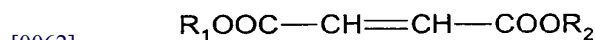
[0057] 상기 A)에 사용된 이소시아네이트, 폴리이소시아네이트, 폴리이소시아네이트 예비중합체 또는 이소시아네이트 혼합물의 평균 NCO 관능기 수는 1.8 이상 내지 5 이하인 것이 바람직하고, 2 이상 내지 3.5 이하인 것이 특히 바람직하며, 2 이상 내지 2.5 이하인 것이 매우 바람직하다.

[0058] **성분 B)**

[0059] 본 발명의 범위내에서, 성분 B)는 원칙적으로 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 화합물일 수 있다. 예를 들면, 성분 B)는 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 폴리아민일 수 있다. 이와 관련하여, 본 발명의 범위내에서, '이소시아네이트 반응성 아미노기'라는 표현은  $\text{NH}_2$  기 또는  $\text{NH}$  기를 의미하는 것으로 이해된다.

[0060] 성분 B)는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르, 특히 아미노 작용성 폴리아스파르트산 에스테르이거나, 이것을 포함하는 것이 바람직하다.

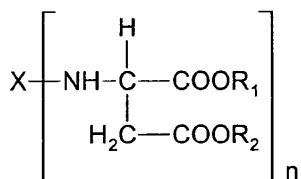
[0061] 바람직하게 사용되는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르의 제조는 상응하는 1급 2관능기 이상의 아민  $\text{X}(\text{NH}_2)_n$ 을 하기 화학식으로 표시되는 말레인산 또는 푸마르산 에스테르로 전환시킴으로써 수행할 수 있다:



[0063] 바람직한 말레인산 또는 푸마르산 에스테르는 말레인산 디메틸 에스테르, 말레인산 디에틸 에스테르, 말레인산 디부틸 에스테르 및 상응하는 푸마르산 에스테르이다. 바람직한 1급 2관능기 이상의 아민  $\text{X}(\text{NH}_2)_n$ 은 에틸렌디아민, 1,2-디아미노프로판, 1,4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 2,5-디아미노-2,5-디메틸헥산, 2-메틸-1,5-디아미노펜탄, 2,2,4- 및/또는 2,4,4-트리메틸-1,6-디아미노헥산, 1,11-디아미노운데칸, 1,12-디아미노도데칸, 1-아미노-3,3,5-트리메틸-5-아미노메틸시클로헥산, 2,4- 및/또는 2,6-헥사히드로틀루일렌디아민, 2,4'- 및/또는 4,4'-디아미노디시클로헥실메탄, 3,3'-디메틸-4,4'-디아미노디시클로헥실메탄, 2,4,4'-트리아미노-5-메틸-디시클로헥실메탄 및 지방족으로 결합된 1급 아미노기를 갖고 수 평균 분자량  $M_n$ 이 148 g/몰 이상 내지 6000 g/몰 이하인 폴리에테르아민 또는 이들의 혼합물이다. 특히 바람직한 1급 2관능기 이상의 아민은 4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 2-메틸-1,5-디아미노펜탄, 2,2,4-트리메틸-1,6-디아미노헥산 또는 2,4,4-트리메틸-1,6-디아미노헥산 또는 이들의 혼합물이다.

[0064] 본 발명의 바람직한 실시양태의 범위내에서, 성분 B)는 하기 화학식 I로 표시되는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르이거나, 이것을 포함한다:

[0065] <화학식 I>



[0066]

[0067] 상기 식에서, X는 n가 아민으로부터 2개 이상의 1급 아미노기를 제거함으로써 얻어지는 n가 유기 잔기를 나타내고;

[0068] R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 체레비티노프(Tserevetinov) 활성 수소 원자를 갖지 않는 동일하거나 상이한 유기 잔기를 나타내고;

[0069] n은 2 이상의 정수를 나타낸다.

[0070] 화학식 I에서 X는 1,4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 2-메틸-1,5-디아미노펜탄, 2,2,4- 또는 2,4,4-트리메틸-1,6-디아미노헥산으로부터 아미노기를 제거함으로써 얻어지는 2가 유기 잔기를 나타내는 것이 바람직하다.

[0071] 본 발명의 범위내에서 '체레비티노프 활성 수소 원자'라는 표현은 체레비티노프에 의해 발견된 과정에 따라서 메틸마그네슘 요오다이드와의 전환 반응의 결과로서 메탄을 제공하는 결합된 수소 원자를 의미하는 것으로 이해된다. 구체적으로, 본 발명의 보호 범위내에서, OH기, NH기 및 SH기는 체레비티노프 활성 수소 원자를 갖는 기로 파악된다. 체레비티노프 활성 수소원자를 갖는 화합물의 예로서는 카르복시, 히드록시, 아미노, 이미노 또는 티올기를 관능기로서 함유하는 화합물을 들 수 있다.

[0072] 그러므로, R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 OH, NH 또는 SH기를 갖지 않는 동일하거나 상이한 유기 잔기를 나타내는 것이 바람직하다.

[0073] 본 발명의 범위내에서, R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 각각 서로 독립적으로 탄소 원자 수가 1 내지 10개인 직쇄 또는 분지쇄 알킬기, 특히 바람직하게는 메틸 또는 에틸기를 나타낸다.

[0074] 본 발명의 바람직한 실시양태의 범위내에서, R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 에틸기를 나타내고, X는 n가 아민으로서의 2-메틸-1,5-디아미노펜탄으로부터 유도된다.

[0075] 화학식 I에서 n은 n가 아민의 원자수를 기재한 것으로서, 2 이상 내지 6 이하의 정수, 특히 바람직하게는 2 이상 내지 4 이하의 정수, 예컨대 2를 나타낸다.

[0076] 전술한 출발 물질들로부터 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르 B)를 제조하는 것은 DE 693 11 633A호에 따라 수행할 수 있다. 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르 B)의 제조는 0℃ 이상 내지 100℃ 이하 범위의 온도에서 수행하는 것이 바람직하다. 이러한 맥락에서, 출발 물질들은 적어도 하나, 바람직하게는 정확히 하나의 올레핀계 이중 결합이 각각의 1급 아미노기에 분배될 수 있는 정량적인 비율로 사용되는 것이 바람직하다. 전환 반응 이후에, 임의로 과량으로 사용된 출발 물질은 증류에 의해 분리 제거할 수 있다. 전환 반응은 과상에서 또는 메탄올, 에탄올, 프로판올 또는 디옥산과 같은 용매 또는 이와 같은 유형의 용매의 혼합물의 존재하에서 수행할 수 있다. B)를 제조하기 위해서 촉매도 사용할 수 있다.

[0077] 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르 대신에, 또는 이것에 더하여, 2개 이상의 이소시아네이트 반응성 아미노기를 갖는 또 다른 화합물도 사용할 수 있다. 그 예로서는, 지방족, 시클로지방족 및/또는 방향족 디아민 또는 폴리아민, 예컨대 1,2-에틸렌디아민, 1,2-디아미노프로판, 1,3-디아미노프로판, 1,4-디아미노부탄, 1,6-디아미노헥산, 이소포론디아민, 2,2,4- 및 2,4,4-트리메틸헥사메틸렌디아민의 이성질체 혼합물, 2-메틸펜타메틸렌디아민, 디에틸렌트리아민, 트리아미노노난, 1,3- 및 1,4-크실릴렌디아민, α, α, α', α'-테트라메틸-1,3-크실릴렌디아민, α, α, α', α'-테트라메틸-1,4-크실릴렌디아민, 4,4'-디아미노디시클로헥실메탄, 디메틸에틸렌디아민, 1-메틸-3,5-디에틸-2,4-디아미노벤젠, 1-메틸-3,5-디에틸-2,6-디아미노벤젠, 1,3,5-트리에틸-2,6-디아미노벤젠, 3,5,3',5'-테트라에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,5,3',5'-테트라이소프로필-4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,5-디에틸-3',5'-디이소프로필-4,4'-디아미노디페닐메탄, 폴리옥시알킬렌아민(폴리에테르아민), 예컨대 폴리프로필렌디아민, 또는 이러한 유형의 디아민의 임의의 혼합물 또는 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르와의 임의의 혼합물을 들 수 있다. 이러한 맥락에서, 이소시아네이트에 대한 반응성이 낮은 화합물들을 사용하는 것이 바람직하며, 그 예로서는 아미노기 이외에 하나 이상의 알킬기도 갖는 것이 바람직한 디(1급) 방향족 디아

민을 들 수 있다. 이와 같은 디아민의 예로서는, 3,5-디에틸톨루일-2,6-디아민 또는 3,5-디에틸톨루일-2,4-디아민 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다.

- [0078] 중합체 요소에 사용되는 본 발명에 의한 반응 혼합물은 성분 A)와 B)를 혼합시킴으로써 얻을 수 있다. 여기서 아미노기 대 유리된 NCO 기의 비율은 1:1.5 이상 내지 0.8:1 이하인 것이 바람직하고, 1:1인 것이 특히 바람직하다.
- [0079] A)와 B)의 혼합물의 충분한 가교 반응 및 경화에 도달할 때까지 23℃ 이상에서 소요되는 시간은 일반적으로 1초 이상 내지 10분 이하, 바람직하게는 1분 이상 내지 8분 이하, 특히 바람직하게는 1분 이상 내지 5분 이하에 이를 수 있다. 경화는 촉매에 의해서 촉진될 수 있다. 성분 A)의 폴리이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트 예비중합체의 이소시아네이트기는, 성분 B), 예를 들면 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르, 디아민 및/또는 NH<sub>2</sub> 관능기 함유 및/또는 NH 관능기 함유 폴리아민 이외에도, 다른 이소시아네이트 반응성 기를 갖는 화합물, 예컨대 디올 또는 폴리올에 의해서 부분적으로 전환될 수 있다. 바람직한 실시양태에서, 성분 A)를 경화시키기 위한 이소시아네이트 반응성 기의 50 몰% 이상은 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르이다. 본 발명의 특히 바람직한 실시양태의 범위내에서, 성분 A)는 전적으로 아미노 관능기 함유 아스파르트산 에스테르에 의해서만 경화된다.
- [0080] 성분 A)와 B)를 포함하는 반응 혼합물을, 한편으로는, 전극상에 직접 적용하여 전극상에서 경화시킬 수 있다. 다른 한편으로는, 먼저 반응 혼합물로부터 필름 또는 시트를 제조하고 임의로 완전히 경화시킨 후에 전극과 합칠 수도 있다. 여기서, 접착제를 사용하거나, 반응 혼합물 자체의 접착력을 이용할 수 있다.
- [0081] 상기 반응 혼합물은 성분 A)와 B) 이외에도 보조 물질 및 첨가 물질을 추가로 더 함유할 수 있다. 이와 같은 보조 물질 및 첨가 물질의 예로서는 가교제, 증점제, 조용매, 요변성부여제, 안정화제, 항산화제, 광차단제, 유화제, 계면활성제, 접착제, 가소제, 소수성부여제, 안료, 충전제 및 흐름 조절제를 들 수 있다.
- [0082] 반응 혼합물은 성분 A)와 B)이외에 충전제를 추가로 더 함유할 수 있다. 이러한 충전제는 예컨대 중합체 요소의 유전율을 조절할 수 있다. 반응 혼합물은 유전율을 증가시키기 위한 목적으로 충전제, 예를 들면 고유전율 충전제를 포함하는 것이 바람직하다. 이와 같은 충전제의 예로서는, 카본 블랙, 흑연, 단일벽 또는 다중벽 탄소 나노튜브 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다. 이와 관련하여, 구체적으로 부동태를 나타내는 유형의 카본 블랙이 중요하며, 이 카본 블랙은 실제로 침투(percolation) 역치 아래의 낮은 농도에서 유전율을 증가시키며, 그림에도 불구하고 중합체의 전도도를 증가시키지 않는다.
- [0083] 본 발명의 범위내에서, 유전율을 증가시키고/시키거나 전기 파괴 강도를 증가시키기 위한 첨가제를 필름 형성 이후에도 첨가할 수 있다. 이러한 첨가제의 첨가는 예컨대 추가의 층(또는 몇 개의 추가의 층들)을 형성함으로써, 또는 중합체 요소의 침투에 의해, 예를 들면 중합체 요소내로의 확산에 의해 수행할 수 있다.
- [0084] 본 발명에 의한 필름 형성 조성물의 적용은 그 자체로서 잘 알려진 모든 형태의 적용 방법에 의해 수행할 수 있으며, 그 예로서는 나이프 코팅, 브러싱, 캐스팅, 원심분리, 분무 또는 압출을 들 수 있다.
- [0085] 또한, 임의로 건조 단계가 개재된 다층 적용 방법도 가능하다.
- [0086] 반응 혼합물의 건조 및 고정은 30℃ 이상의 온도에서, 바람직하게는 10℃ 이상 내지 200℃ 이하의 온도에서 수행할 수 있다. 이러한 맥락에서, 코팅된 기재를 가열된 표면상에서, 예를 들면 로울러 상에서 운반할 수 있다. 적용 및 건조 단계는 각각 불연속적으로 또는 연속적으로 수행할 수 있다. 해당하는 공정이 전체적으로 연속적인 것이 바람직하다.
- [0087] 본 발명에 의한 중합체 요소는 추가의 층들을 구비할 수 있다. 추가의 층들은 일면상에 또는 양면상에, 하나의 층으로 또는 적층된 몇 개의 층으로, 중합체 요소의 전체적인 또는 평면적인 부분 코팅에 의해서 구비될 수 있다.
- [0088] 중합체 필름을 제조하는데 적합한 캐리어 재료는 구체적으로 유리, 이형지, 시트 및 플라스틱이며, 이러한 캐리어로부터 중합체 필름을 임의로 간단히 제거할 수 있다.
- [0089] 각각의 층들의 가공은 수동식 또는 기계식 캐스팅 또는 나이프 코팅에 의해 수행할 수 있다. 인쇄, 스크린 인쇄, 사출 성형, 분무 및 침지도 가공 기법으로서 사용 가능하다.
- [0090] 본 발명에 의한 중합체 요소는 우수한 기계적 강도 및 높은 탄성을 나타내는 것이 유리하다. 구체적으로, 본 발명에 의한 중합체 요소는 0.2 MPa 이상, 특히 0.4 MPa 이상 50 MPa 이하의 최대 응력, 및 250% 이상, 특히

350% 이상의 최대 변형률을 나타낼 수 있다. 또한, 본 발명에 의한 중합체 요소는 100% 이상 내지 200% 이하의 유용한 변형률 범위내에서 0.1 MPa 이상 내지 1 MPa 이하, 예를 들면 0.1 MPa 이상 내지 0.8 MPa 이하, 특히 0.1 MPa 이상 내지 0.3 MPa 이하(DIN 53504에 의해 측정함)의 응력을 나타낼 수 있다. 또한, 본 발명에 의한 중합체 요소는 변형률이 100%인 경우에, 0.1 MPa 이상 내지 1 MPa 이하, 예를 들면 0.2 MPa 이상 내지 5 MPa 이하(DIN EN 150 672 1-1에 의해 측정함)의 탄성 모듈러스를 나타낼 수 있다.

[0091] 가교 반응 이후에, 중합체 필름, 중합체 시트 또는 중합체 코팅 형태를 취하는 본 발명에 의한 중합체 요소는, 0.1  $\mu\text{m}$  이상 내지 1500  $\mu\text{m}$  이하, 예를 들면 1  $\mu\text{m}$  이상 내지 500  $\mu\text{m}$  이하, 특히 5  $\mu\text{m}$  이상 내지 200  $\mu\text{m}$  이하, 바람직하게는 5  $\mu\text{m}$  이상 내지 50  $\mu\text{m}$  이하의 층 두께를 가질 수 있다.

[0092] 또한, 상기 필름은 우수한 전기적 특성을 갖는 것이 유리하며, 이는 ASTM D 149에 의한 파괴 강도 측정 및 ASTM D 150에 의한 유전율의 측정에 의해 결정된다.

[0093] 본 발명에 의한 변환기를 제작하기 위해서, 본 발명에 의한 중합체 요소를 예컨대 WO 01/06575호에 개시된 바와 같이 양면상에서 전극으로 피복할 수 있다. 이와 같은 기본 구조를 센서, 액츄에이터 및/또는 발전기를 제조하기 위해 매우 다양한 형태로 사용할 수 있다.

#### [0094] 실시예

[0095] 특별한 언급이 없는 한, 모든 백분율 데이터는 중량에 대한 것이다.

[0096] 특별한 언급이 없는 한, 모든 분석학적 측정치는 23°C의 온도에 대한 것이다.

[0097] 별다른 언급이 없는 한, NCO 함량은 DIN-EN ISO 11909에 따라서 부피 기준으로 측정하였다.

[0098] 기재된 점도는 독일, 오스트필테른에 소재하는 엔톤 파르 저머니 게엠베하에 의해 제조된 회전 점도계를 사용해서 23°C에서 DIN 53019에 따라 회전 점도 측정법에 의해 측정하였다.

[0099] 본 발명에 의한 분산액내로 충전제를 혼입하는 것은 스피드믹서(SpeedMixer)(독일, 함 59030, 포스트파흐 43 80)에 소재하는 하우스차일드 운트 콤파니 카게에 의해 제조된 모델 150 FV)를 사용해서 수행하였다.

[0100] 필름 층 두께의 측정은 독일, 트라운로이트 83292, 포스트파흐 1260에 소재하는 하이덴하인 게엠베하에 의해 제조된 기계적 탐침을 사용해서 수행하였다. 테스트 표본을 상이한 세 장소에서 측정하였으며, 평균값을 대표적인 측정치로서 사용하였다.

[0101] 인장 테스트는 즈웬에 의해 제조된 하중 셀을 구비한 인장 시험기 모델 번호 1455를 사용해서, 총 측정 범위를 1 kN으로 하여, DIN 53 504에 따라 50 mm/분의 인장 테스트 속도하에 수행하였다. 테스트 표본으로서는, S2 인장 테스트 바아를 사용하였다. 매회 측정은 세개의 유사하게 제조된 테스트 표본에 대하여 수행하였으며, 얻어진 데이터의 평균치를 평가용으로 사용하였다. 구체적으로 이를 위해서, MPa 단위의 인장 강도외에, % 단위의 파단시 변형률, MPa 단위의 100% 및 200% 변형률하의 응력도 측정하였다.

[0102] 전기 부피 저항률의 측정은 미국, 오하이오 44139, 클리브랜드, 오로라 로드 28775에 소재하는 키이트리 인스트루먼트 인코포레이티드에 의해 제조된 측정 기기(엘라스토머: 모델 번호 6517 A: 측정 헤드: 모델 번호 8009)와 함께 공급된 프로그램(모델 번호 6524: 고저항 측정 소프트웨어)를 사용해서 수행하였다. 대칭적인 직사각형 전압  $\pm 50\text{V}$ 를 10회의 기간동안 매 기간당 4분의 시간동안 부하하고, 전류를 측정하였다. 전압을 바꾸기 직전 전류에 대한 값으로부터, 매회 기간의 전압에 있어서 테스트 단편의 저항을 계산하고 기간의 회수에 대하여 그래프로 나타내었다. 그래프의 최종값은 당해 표본의 전기 부피 저항률에 대한 측정치를 나타낸다.

[0103] ASTM D 150-98에 따른 유전율의 측정은 독일, 훈츠안겐 56414, 오베레바체 스트라스 9에 소재하는 노보콘트롤 테크놀로지스 게엠베하 운트 콤파니 카게에 의해 제조된 측정 기기를 사용해서(측정 브리지: 알파-A 분석기, 측정 헤드: ZGS 활성 샘플 셀 테스트 계면) 테스트 표본의 직경을 20 mm로 하여 수행하였다. 여기서,  $10^7\text{ Hz}$  내지  $10^{-2}\text{ Hz}$  범위의 주파수를 조사하였다. 조사하고자 하는 재료의 유전율 측정치로서,  $10^{-2}\text{ Hz}$ 하의 유전율의 실제 부분을 선택하였다.

[0104] ASTM D 149-97a에 따른 파괴 강도의 측정은 고압원인 독일, 로젠하임 83026, 안톤-야곱-스트리트 4에 소재하는 하인징거에 의해 제조된 모델 LNC 20000-3pos를 사용하고, DK1(독일, 다름슈타트 64289, 스크로스가르텐스트리트에 소재하는 도이치 쿤스트스토프스티튜트)에서 특수하게 제작된 표본 홀더를 사용해서 수행하였다. 상기 표본 홀더는 기계적인 예비하중이 극소한 상태로 두꺼운 중합체 표본과 균일하게 접촉하며 조작자가 전압과 접촉



하게 되는 것을 방지한다. 실리콘 오일중에서 공기중 고장에 대한 절연을 목적으로 한 이와 같은 설치에서, 미리 압축 응력을 주지 않은 중합체 시트를, 그 시트를 통해 전기적인 고장이 일어날 때까지 전압을 증가시키면서 정적으로 하중하였다. 측정 결과는 중합체 시트의 두께에 대한 파괴시에 도달한 전압으로  $V/\mu m$  단위이다.

[0105] **사용된 물질 및 약어:**

[0106] 프린텍스(Printex) 140: 독일, 프랑크푸르트 암 마인 60311, 바이스프라우엔스트리트 9에 소재하는 데구사 게엠베하의 제품, 평균 입자 크기 29 nm, BET 표면적 90  $m^2/g$ , pH 값 4.5(이 제품에 대한 모든 데이터는 데구사 데이터 시트에 의거함).

[0107] 하르테(Harter) DT: 치환된 방향족 디아민, NH 당량이 약 90, 아민가 약 630 mg KOH/g, 점도 약 200 mPas.

[0108] **적용에 대한 테스트**

[0109] **실시예 1(예비중합체 A-1)**

[0110] 헥사메틸렌 디이소시아네이트(HDI) 840 g 및 아연 옥토에이트 0.08 g을 4리터 4-목 플라스크에 넣었다. 1 시간 이내에, 물질량이 8000 g/몰인 2관능기 폴리프로필렌 글리콜 폴리에테르 1000 g을 80℃에서 첨가하고 추가로 1 시간 동안 교반하였다. 이어서, 벤조일 클로라이드 0.3 g을 첨가하였다. 이어서, 과량의 HDI를 박막 증류에 의해 130℃에서 0.1 토르하에 증류 제거하였다. NCO 함량이 1.80%인 예비중합체를 수득하였다.

[0111] **실시예 2(예비중합체 A-2)**

[0112] 톨루일렌 디이소시아네이트(TDI) 840 g 및 아연 옥토에이트 0.08 g을 4리터 4-목 플라스크에 넣었다. 1 시간 이내에, 물질량이 8000 g/몰인 2관능기 폴리프로필렌 글리콜 폴리에테르 1000 g을 80℃에서 첨가하고 추가로 1 시간 동안 교반하였다. 이어서, 벤조일 클로라이드 0.3 g을 첨가하였다. 이어서, 과량의 TDI를 박막 증류에 의해 130℃에서 0.1 토르하에 증류 제거하였다. NCO 함량이 1.66%인 예비중합체를 수득하였다.

[0113] **실시예 3(아스파르테이트 B)**

[0114] 질소 대기하에 디에틸 말레에이트 2몰에 2-메틸-1,5-디아미노헨탄 1몰을, 반응 온도가 60℃를 넘지 않도록 서서히 첨가하였다. 이어서, 디에틸 말레에이트가 반응 혼합물에서 더 이상 검출되지 않을 수 있을 때까지의 시간 동안 60℃로 가열을 수행하였다.

[0115] **실시예 4(본 발명에 의한 실시예)**

[0116] 사용된 원료는 별도로 탈기 처리하지 않았다. 필요량인 실시예 3에서 얻은 아스파르테이트 B 2 g 및 실시예 2에서 얻은 예비중합체 A-2 20.79 g을 평량하여 폴리프로필렌 비이커에 넣고 스피드믹서에서 2초 동안 3000 rpm 하에 혼합하였다. 여전히 액상인 반응 혼합물로부터 습윤 필름 두께가 1 mm인 필름을 수동으로 유리판상에 나이프 코팅하였다. 필름을 제조한 후에, 모든 필름을 건조 캐비닛에서 80℃하에 밤새 건조시킨 후에, 120℃에서 5분 동안 후처리로 어니일링하였다. 필름은 어니일링한 후에 손으로 유리판으로부터 쉽게 탈착시킬 수 있었다.

[0117] **실시예 5(본 발명에 의한 실시예)**

[0118] 사용된 원료는 별도로 탈기 처리하지 않았다. 필요량인 하르테 DT 2 g 및 실시예 2에서 얻은 예비중합체 A-2 20.79 g을 평량하여 폴리프로필렌 비이커에 넣고 스피드믹서에서 2초 동안 3000 rpm하에 혼합하였다. 여전히 액상인 반응 혼합물로부터 습윤 필름 두께가 1 mm인 필름을 수동으로 유리판상에 나이프 코팅하였다. 필름을 제조한 후에, 모든 필름을 건조 캐비닛에서 80℃하에 밤새 건조시킨 후에, 120℃에서 5분 동안 후처리로 어니일링하였다. 필름은 어니일링한 후에 손으로 유리판으로부터 쉽게 탈착시킬 수 있었다.

[0119] **실시예 6(본 발명에 의한 실시예)**

[0120] 사용된 원료는 별도로 탈기 처리하지 않았다. 필요량인 하르테 DT 0.5 g, 실시예 3에서 얻은 아스파르테이트 B 0.5 g 및 실시예 1에서 얻은 예비중합체 A-1 18.07 g을 평량하여 폴리프로필렌 비이커에 넣고 스피드믹서에서 2초 동안 3000 rpm하에 혼합하였다. 여전히 액상인 반응 혼합물로부터 습윤 필름 두께가 1 mm인 필름을 수동으로 유리판상에 나이프 코팅하였다. 필름을 제조한 후에, 모든 필름을 건조 캐비닛에서 100℃하에 밤새 건조시킨 후에, 120℃에서 5분 동안 후처리로 어니일링하였다. 필름은 어니일링한 후에 손으로 유리판으로부터 쉽게 탈착시킬 수 있었다.

[0121] **실시예 7(비교예)**

[0122] 모든 액상 원료는 3단계 공정에 의해 아르곤하에서 주의깊게 탈기 처리하였으며, 카본 블랙은 125  $\mu\text{m}$  체를 통해서 체분류하였다. 테라탄(Terathane) 650(인비스타 게엠베하, 하테르하임 D-65795, 물질량 Mn이 650인 폴리-THF) 10 g을 카본블랙 0.596 g(케첸블랙(Ketjenblack) EC 300J, 약조 노벨 아게의 제품)과 함께 60 ml 1회용 혼합용기(APM-테크니카 아게, 주문번호 1033152)에 평량해놓고 스피드믹서(스위스, 히어부룩 9435에 소재하는 APM-테크니카 아게의 제품; 마케팅 D: 하우스차일드; 타입 DAC 1 50 FVZ)에서 3분동안 3000 rpm하에 혼합하여 균일한 페이스트를 얻었다. 이어서, 디부틸틴 디라우레이트(메타큐어(Metacure®) T-12; 에어 프로덕츠 앤드 케미칼스, 인코오포레이티드) 0.005 g 및 이소시아네이트 N3300(HDI의 이소시아누레이트 삼합체; 바이엘 매터리얼 사이언스 아게의 제품) 6.06 g을 평량하고 스피드믹서에서 1분 동안 3000 rpm하에 혼합하였다. 반응 페이스트를 유리관상에 붓고 나이프로 1 mm의 습윤 필름 두께로 인출하여 고형분이 2%인 균일한 필름을 제조하였다. 이어서, 필름을 80℃에서 16 시간 동안 어니일링하였다.

#### [0123] 실시예 8(비교예)

[0124] 모든 액상 원료는 3단계 공정에 의해 아르곤하에서 주의깊게 탈기 처리하였으며, 카본 블랙은 125  $\mu\text{m}$  체를 통해서 체분류하였다. 테라탄 650(인비스타 게엠베하, 하테르하임 D-65795, 독일, 물질량 Mn이 650인 폴리-THF) 10 g을 60 ml 1회용 혼합용기(APM-테크니카 아게, 주문번호 1033152)에 평량해 넣었다. 이어서, 디부틸틴 디라우레이트(메타큐어 L-12; 에어 프로덕츠 앤드 케미칼스, 인코오포레이티드) 0.005 g 및 이소시아네이트 N3300(HDI의 이소시아누레이트 삼합체; 바이엘 매터리얼 사이언스 아게의 제품) 6.06 g을 평량하고 스피드믹서에서 1분 동안 3000 rpm하에 혼합하였다. 반응 생성물을 유리관상에 붓고 나이프로 1 mm의 습윤 필름 두께로 인출하여 균일한 필름을 제조하였다. 이어서, 필름을 80℃에서 16 시간 동안 어니일링하였다.

#### [0125] 실시예 9(비교예)

[0126] 모든 액상 원료는 3단계 공정에 의해 아르곤하에서 주의깊게 탈기 처리하였으며, 카본 블랙은 125  $\mu\text{m}$  체를 통해서 체분류하였다. 테라탄 650(인비스타 게엠베하, 하테르하임 D-65795, 독일, 물질량 Mn이 650인 폴리-THF) 10 g을 프린텍스 140 0.536 g과 함께 60 ml 1회용 혼합용기(APM-테크니카 아게, 주문번호 1033152)에 평량해놓고 스피드믹서(스위스, 히어부룩 9435에 소재하는 APM-테크니카 아게의 제품; 마케팅 D: 하우스차일드; 타입 DAC 1 50 FVZ)에서 3분동안 3000 rpm하에 혼합하여 균일한 페이스트를 얻었다. 이어서, 디부틸틴 디라우레이트(메타큐어 T-12; 에어 프로덕츠 앤드 케미칼스, 인코오포레이티드) 0.005 g 및 이소시아네이트 N3300(HDI의 이소시아누레이트 삼합체; 바이엘 매터리얼 사이언스 아게의 제품) 6.06 g을 평량하고 스피드믹서에서 1분 동안 3000 rpm하에 혼합하였다. 반응 페이스트를 유리관상에 붓고 나이프로 1 mm의 습윤 필름 두께로 인출하여 고형분이 2%인 균일한 필름을 제조하였다. 이어서, 필름을 80℃에서 16 시간 동안 어니일링하였다.

### 표 1

실시예 4 내지 9에서 제조한 필름의 특성

실시예	파단시 변형률	인장 강도	100% 변형률하의 응력	200% 변형률하의 응력	전기 부피 저항	유전율	파괴 강도
	[%]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[ohm cm]		[V/ $\mu\text{m}$ ]
4*	288	1.1	0.47	0.48	$1.9 \cdot 10^{11}$	25.0	25
5*	253	3.8	1.60	3.00	$2.6 \cdot 10^{12}$	9.0	29
6*	316	2.1	0.87	1.36	$1.9 \cdot 10^{11}$	36.6	32
7	57	3.4	-	-	$6.4 \cdot 10^{11}$	28.4	7
8	44	1.7	-	-	$2.7 \cdot 10^{12}$	18.6	11
9	46	1.6	-	-	$7.9 \cdot 10^{11}$	550.0	5

\* 본 발명에 의한 실시예

[0127]

- [0128] 상기 테스트를 통해서, 본 발명에 의한 필름이 종래 기술에 비하여 명백한 장점을 제공한다는 것을 분명히 알 수 있다. 구체적으로, 아스파르트산 에스테르와 폴리이소시아네이트 예비중합체로부터 제조된 본 발명에 의한 필름의 경우 이러한 장점은 더욱 배가될 수 있었다.
- [0129] 본 발명에 의한 필름을 사용할 경우에 특히 유리한 점은, 특히 아스파르트산 에스테르와 폴리이소시아네이트 예비중합체로부터 제조된 본 발명에 의한 바람직한 실시양태에 있어서, 유전율이 높고, 동시에 변형되지 않은 상태에서 파괴 강도가 매우 높으며, 기계적 특성이 매우 우수하여, 예를 들면 탄성이 높고, 과단시 신장률이 높고, 사용 범위내에서 보통의 변형률하에 낮은 응력으로 응력-변형 곡선이 적절하다는 점이다. 구체적으로, 높은 유전율외에도, 아스파르트산 에스테르와 폴리이소시아네이트 예비중합체로부터 제조된 본 발명에 의한 필름의 특히 바람직한 실시양태에서, 변형되지 않은 상태에서 매우 높은 파괴 강도와 함께 과단시 변형률 및 변형양상을 일층 향상시킬 수 있었다. 비교예에서는, 100% 또는 200%하의 응력이 측정 불가능하였는데, 비교예의 재료들이 40% 또는 60%에서 이미 인열되었기 때문이다.