



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2014-0022440
 (43) 공개일자 2014년02월24일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
 C08J 9/32 (2006.01) C08K 7/22 (2006.01)
 C08K 9/00 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2013-7034769(분할)
 (22) 출원일자(국제) 2006년10월20일
 심사청구일자 2013년12월27일
 (62) 원출원 특허 10-2008-7011982
 원출원일자(국제) 2006년10월20일
 심사청구일자 2011년10월14일
 (85) 번역문제출일자 2013년12월27일
 (86) 국제출원번호 PCT/US2006/041114
 (87) 국제공개번호 WO 2007/047970
 국제공개일자 2007년04월26일
 (30) 우선권주장
 60/728,948 2005년10월21일 미국(US)
 60/730,598 2005년10월27일 미국(US)

(71) 출원인
캐보트 코포레이션
 미합중국 매사추세츠 02210-2019 보스턴, 스위트
 1300, 투 씨포트 라인
 (72) 발명자
메나시, 자밀
 미국 02540 매사추세츠주 팔마우스 체이스 로드
 73
바우어, 올리히
 독일 데-65843 슐츠바흐 엘름 하인텔 81
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
김영, 양영준

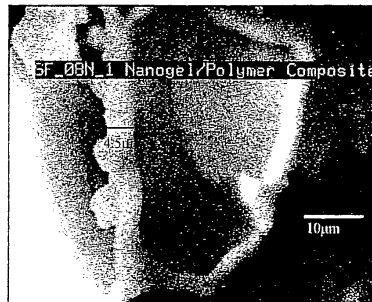
전체 청구항 수 : 총 1 항

(54) 발명의 명칭 **에어로겔 기재 복합체**

(57) 요약

복합체, 예컨대 신택틱 폼 (syntactic foam)이 기술되어 있다. 복합체는 1종 이상의 중합체 및 1종 이상의 에어로겔을 함유한다. 에어로겔은 코팅 물질로 코팅되어 중합체가 에어로겔의 기공으로 침입하는 것을 적어도 실질적으로 방지한다. 복합체의 제조 방법, 뿐만 아니라 복합체의 용도가 또한 기술되어 있다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

포츠만, 엘마르

독일 데-65830 크리프텔 로세르트스트라췘 53

피터슨, 앤드류, 에이.

미국 02125 매사추세츠주 돌체스터 #3 타프트 스트리트 19

빌킨스, 안나, 카.

미국 02493 매사추세츠주 웨스턴 브룩 로드 63

앤튼, 미하이

미국 02139 매사추세츠주 캄브리지 스펀리다키스 테라스 31

도시, 드하발

미국 02421 매사추세츠주 렉싱턴 렉싱턴 릿지 로드 1113

달젤, 윌리암

미국 02050 매사추세츠주 마쉬필드 박스 1256 올드 오션 스트리트300

특허청구의 범위

청구항 1

연속상으로서의 1종 이상의 중합체 및 기공 (pore)을 갖는 1종 이상의 미립자 형태의 에어로겔을 포함하며,

여기서 1종 이상의 에어로겔이 연속상 중에 분산되고, 상기 1종 이상의 중합체가 상기 복합체의 중량%의 대부분을 차지하고,

상기 중합체가 상기 에어로겔의 기공으로 유입되지 않고, 상기 에어로겔의 적어도 일부가 그 표면상에서 상기 중합체가 상기 기공으로 침입하는 것을 방지하는 코팅으로 적어도 부분적으로 코팅되고,

상기 코팅은 상기 에어로겔 표면의 표면적의 75% 내지 100%를 캡슐화시키며,

상기 코팅은 기공 사이를 연결하거나 또는 기공을 차단하고,

상기 코팅은 상기 연속상과는 상이한 코팅이며,

상기 중합체가 유기 중합체이고 상기 코팅이 계면활성제 또는 습윤제를 포함하는 수계 중합체 코팅인 것인 복합체의 용도.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 선택틱 폼 (syntactic foam) 및 복합체, 뿐만 아니라 이의 제조 방법 및 선택틱 폼 및 복합체에 대한 용도에 관한 것이다. 더 구체적으로는, 본 발명은 에어로겔을 함유하는 선택틱 폼 및 복합체에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 선택틱 폼은 일반적으로 수지 환경 중 사전 제작되고, 제조된 "기포" 또는 미세구 충전체로 생각된다. 선택틱 폼은 이의 수지 매트릭스가 예비성형 입자, 예컨대 유리 또는 세라믹 미세구와 함께 포매된 복합 물질이다. 선택틱 폼은, 미리 결정된 크기의 공동 (hollow) 또는 고체 구 및 충전 조성물이 사용되어 폼의 밀도를 조절한다는 점에 의해 기타 폼으로부터 구별된다.

[0003] 선택틱 폼은 낮은 밀도 (단위 부피당 질량)의 충전 물질을 요구하는 목적, 예컨대 심해 전류 계측, 대잠진, 샌드위치 복합체, 우주 공간 산업 및 자동차 산업용 해저/해양 장비에 사용되어 왔다.

[0004] 선택틱 폼의 예로서, 예를 들어, 불용성 매트릭스를 갖는 선택틱 폼에 관한 미국 특허 제 5,120,769호, 및 불용성 매트릭스 및 탄소 미세구를 갖는 폼에 관한 미국 특허 제 3,832,426호를 들 수 있다. 가용성 중합체 매트릭스를 갖는 선택틱 폼은 미국 특허 제 5,432,205호에 언급되어 있다. 선택틱 폼은 다수의 산업적 용도를 갖는다.

[0005] 선택틱 폼에 앞서, 일반적으로 2 가지 유형의 폼이 존재하였다: 가스 주입에 의해 생성된 블로운 폼; 및, 화학 물질의 사용을 통해 생성된 자가 팽창 (self-expanding) 폼. 더 최근에는, 고체를 유리, 세라믹, 또는 중합체의 미세한 구와 혼합시킴으로써 생성된 물질이 산업 및 첨단 기술 용도에서 증가하는 용도 범위를 갖는다.

[0006] 블로운 폼은, 가스를 액체와 혼합하거나 이에 주입하여 이것이 육조 내의 비누 거품과 같이 거품이 일도록 야기함으로써 제조된다. 거품이 고체화될 때, 폼이 생성된다. 전형적으로, 자가 팽창 폼은 2종 이상의 화학적 성분의 사용을 요구한다: 하나는 가스로 분해되어 거품을 형성하고 하나는 셀의 벽을 형성함. 다시, 거품 주위의 화학적 성분이 고체화될 때, 폼이 생성된다.

[0007] 경질 폼 및 이의 제조 방법은 종래 기술에 잘 공지되어 있다. 상기 폼은 전형적으로 발포제의 존재 하에 폴리이소시아네이트를 이소시아네이트 반응성 물질, 예컨대 폴리올과 반응시킴으로써 제조된다. 과거에 사용된 다수의 발포제는 더 이상 허용가능하지 않고, 최근 개발된 것은 훨씬 더 고가에서 이용가능하다. 더욱이, 발포제에 의해 제조된 최신식 경질 폼은 폼이 사용되는, 즉, 10,000 피트 이상까지의, 심해 파이프라인 절연과 같은 용도에서 요구되는 고 압축 강도를 나타내지 않는다.

- [0008] 최근, 폼의 제조에 사용되는 기본 물질의 가격의 상당한 증가는 사용되는 기본 물질의 양 및 마감 물질의 중량을 감소시키기 위해 충전 물질의 개발 및 사용을 장려하여 왔다. 제안된 충전 물질 및 절연 물질 중 하나는 공동 미세구를 이용한다. 본원에서 사용시, "선택틱"이라는 표현은 셀 물질을 제조하기 위해 중합체 매트릭스 중 공동 구 또는 기타 물질을 사용함을 말한다.
- [0009] 액체 발포제를 캡슐화하는 합성 열가소성 수지 외피를 갖는 팽창된 미세구가 공지되어 있다. 예를 들어, 미국 특허 제 4,829,094호, 4,843,104호 및 4,902,722호를 참고하라. 미국 특허 제 4,829,094호 및 4,843,104호는 낮은 밀도의 충전제를 함유하는 자유 유동성 미세구를 갖는 선택틱-중합체 폼 조성물에 관한 것이다.
- [0010] 미국 특허 제 4,916,173호는 밀러블 (millable) 모델링 저장 용도를 위한 폴리우레탄 (PU) 선택틱 폼 조성물에 관한 것이다. 상기 PU 선택틱 폼 조성물은 높은 유리 전이 온도 및 낮은 열 팽창 계수를 갖고, 중합체 이소시아네이트, 아민계 폴리올, 폴리에테르 트리올, 분자체 물질 및 공동 미세구로부터 제조된다. 폼은 고체 중합체 매트릭스로서 기술된다. 상기 조성물은 폴리메틸렌 폴리올(페닐 이소시아네이트) 기재이고 낮은 물리적 특성(즉, 인장 강도, 신율 등)을 제공하여 모델링 저장 용도에 적절할 수 있으나, 심해 파이프라인 절연에서의 더 큰 요구를 하는 요건에는 적절하지 않을 수 있다.
- [0011] 고체 중합체 매트릭스가 미국 특허 제 4,959,395호에 언급되어 있다. 상기 특허는 개환 중합에 의한 시클로올레핀 단량체의 벌크 중합에 관한 것이고, 여기서 미세 캡슐화된 발포제는 사출 성형 절차 동안 몰드를 채우는 것을 보조하여 성형될 물품의 양쪽 표면이 몰드 표면과 접촉된 상태로 유지되게 한다.
- [0012] 미국 특허 제 4,303,729호 및 4,303,736호는 공동 플라스틱 미세구의 플라스틱 내의 충전제 물질로서의 용도에 관한 것이다. 상기 두 문헌에 의해 기술된 미세구는 일반적으로 큰 직경, 즉 200 내지 10,000 μm 범위의 미세구이다. 상기 미세구는 낮은 열 전도도의 플라스틱 조성물로부터 제조되고 낮은 열 전도도의 가스에 의해 발포되어 개선된 절연 물질 및 복합체를 제조할 수 있다.
- [0013] 2 내지 5 중량%의 총 조성물의 로딩량을 갖는 공동 미세구가 미국 특허 제 4,038,238호에 언급되어 있다. 낮은 밀도의 폴리우레탄은 가벼운 중량의 공동 구 또는 마이크로벌룬 (microballoon) 및 액체 점도 강하제를 함유하는 급속 경화 폴리우레탄 성형 조성물로부터 제조된다.
- [0014] 유리 마이크로벌룬을 포함하는 경질 선택틱 폼이 미국 특허 제 4,082,702호에 언급되어 있다. 상기 폼은 유기 폴리올, 폴리이소시아네이트, 폴리올과 폴리이소시아네이트의 반응을 위한 촉매, 마이크로벌룬, 및 2중 모드 셀 구조를 갖는 내연 폼을 혼합함으로써 수득된다.
- [0015] 미국 특허 제 3,510,392호는 셀 폴리우레탄 중 유리 단괴 (nodule)에 관한 것이다. 폴리우레탄은 폴리이소시아네이트와 반응하는 폴리올 및/또는 폴리에스테르, 및 가교 동안 가스 발포제를 제공하는 물을 함유한다. 반응성 성분은 적절한 혼합 장치 내에서 계면활성제 및 촉매와 균질하게 혼합되어 반응 속도를 조절한다. 셀 모양의 유리 단괴가 몰드 공동의 하부의 균질한 혼합물에 첨가된 후 밀폐되어 폼 형성이 일어난다. 이는 연속 폴리우레탄 상 및 불연속 상(즉, 셀 유리 단괴)을 갖는 건축 패널에 적절하다.
- [0016] 미국 특허 제 6,166,109호는 선택틱 경질 PUR/PIR 폼 보드스톡 (boardstock)에 관한 것이다. 상기 공동 미세구는 탄화수소, 공기 또는 진공으로 채워져서, 균일한 셀 형상을 폼에 도입한다. 0.01 내지 60 μm 의 평균 직경을 갖는 미세구가 밀폐 셀 폴리우레탄 폼에 의해 캡슐화된다. 실시예에서의 폼은 폴리에스테르, 계면활성제, 촉매, 물, 클로로플루오로카본 발포제 및 폴리메틸렌 폴리(페닐이소시아네이트) 기재이다. 상기 선택틱 경질 폼은 2중 모드 셀 구조를 갖는다.
- [0017] JP 4257429는 단열재 및 충전 물질에 유용한 평활 표면을 갖는 폼 시트의 제조에 관한 것이다. 상기 참고 문헌의 폼 시트는 유기 중합체 결합체 및 저 비점 용매 밀봉된 열 팽창성 미세 캡슐을 함유하는 조성물을 베이스 필름 상에 도포하고, 코팅 층 상에 폴리에스테르 필름을 적층하고, 가열하여 코팅 층을 건조 및 팽창시키며 폴리에스테르 필름을 제거함으로써 제조될 수 있다. 생성되는 폼 시트는 균일한 밀폐 셀 및 평활 표면을 갖는다.
- [0018] 단열 선택틱 폼 조성물은 미국 특허 제 6,284,809호에 언급되어 있다. 상기 폼 조성물은 0.120 와트/미터²·K 미만의 열 전도도를 갖고 약 10,000 ft 이하의 깊이에서의 해저 용도를 위한 허용가능한 강도 및 부력 특징을 나타낸다.
- [0019] 통상의 선택틱 폼은 미리 제작되거나 제조된 "기포", 예컨대 미세구를 사용한다. 몇몇은 미세구를 마이크로벌룬 또는 심지어 매크로벌룬 (macroballoon)으로서 일컫는다. 선택틱 폼은 미세구를 수지와 기계적으로 결합시켜 복합 물질을 형성함으로써 제조될 수 있다. 블로운 및 자가 팽창 폼 및 계면활성제 폼은 광범위하게 다양한

크기 및 형태의 가스 포켓의 상당히 무작위한 분포를 발생시키는 한편, 선택틱 폼의 다공성은 미세구를 주의 깊게 선택하고 수지 환경과 혼합시킴으로써 훨씬 더 엄중히 조절될 수 있다. 선택틱 폼은 또한 집합된 폼 (assembled foam)으로도 불린다.

[0020] 통상의 폼은 가시적으로 다공성인 한편, 선택틱 폼은 매우 작은 셀을 가져서 물질이 균질한 고체인 것으로 보일 수 있다. 선택틱 폼은 전형적으로 심해 잠수정, 기구 포장, 전자 기어, 케이블 부표, 심해 드릴 가공을 위한 부양 칼라 (collar), 무선 주파수 및 우주 공간 용도에, 및 공장에서 주형 제작자에 의해 사용된다. 다시 말해, 폼은, 예를 들어, 부력이 중요한 산업적 용도에 사용된다. 선택틱 폼은 또한 약학, 위생, 수의, 농업 및 의료 용도를 위한 코팅되거나 코팅되지 않은 화학 물질, 생물 물질, 기능 식품, 성장 인자, 아미노산, 생물 활성 물질 및 약학적 활성 물질의 담체로서 사용될 수 있다.

[0021] 상기 분야에서의 몇몇 이전의 특허는 부타디엔의 단일중합체, 또는 중합체의 40% 이상이 부타디엔인, 부타디엔 및 스티렌 등의 공중합체인 중합체의 제어된 경화에 의해 제조된 선택틱 폼에 관한 미국 특허 제 3,856,721호를 포함한다. 스티렌 대신, 메틸 또는 에틸 유도체가 사용될 수 있다. 선택틱 폼은 폼 생성물에 강도를 제공하는 미세한 공동 구를 포함하고 선택틱 폼 생성물은 매우 낮은 밀도를 갖는다. 중합 물질은 2 단계 경화된다. 제 1 단계는 저온 경화에 사용되는 메틸에틸 케톤 (MEK) 퍼옥시드 또는 기타 퍼옥시드, 코발트 나프테네이트, 철 나프테네이트, 및 아세틸아세톤 (펜탄디온) 등을 이용하는 저온 경화 시스템이고; 제 2 단계에 사용되는 퍼옥시드는 활성화를 위해 더 고온을 요구한다.

[0022] 미국 특허 제 4,250,136호는 형성될 물품의 형태를 갖는 몰드 내부에 집합되고 위치된 복합 물질의 샌드위치에 관한 것이다. 복합체 샌드위치는 하기 성분으로 이루어진다: (1) 보강 물질, 예컨대 직조 또는 매트 형태의 섬유유리의 제1 또는 하부 층; (2) 액체 열경화성 수지, 예컨대 에폭시, 폴리에스테르, 비닐에스테르 등을 함유하는 초기 탄성 및 개방 셀 폼의 제 1 층이 제 1 보강 층 상에 놓이고; (3) 보강 물질의 제 2 층이 제 1 수지 함유, 개방 셀 폼 층 상에 놓이고; (4) 반죽 유사 농도를 갖는 적절한 양의 비경화된 선택틱 폼이 제 2 보강 층 상에 위치되고; (5) 제 3 보강 층이 비경화된 무정형 선택틱 폼 상에 위치되고; (6) 액체, 수지 함유, 개방 셀, 탄성 폼의 제 2 층이 제 3 보강 층 상에 오버레이되며; (7) 보강 물질의 제 4 또는 상부 층이 제 2 수지 함유 폼 층 상에 놓인다. 그 후, 복합체 샌드위치가 몰드 내부에 위치되고 적절한 열 및 압력이 가해져 비경화된 샌드위치가 몰드의 내부 형태를 취하도록 한다.

[0023] 미국 특허 제 4,425,441호는 고온 및 난연 밀폐된 셀 폴리이미드 폼 물질 및 상기 폼의 제조 방법에 관한 것이다. 방향족 테트라카르복실산 이무수물을 옥손틴과 반응시켜 N-치환된 이미드를 생성하고, 그 후 이를 적절한 알콜로 에스테르화한다. 생성되는 액체는 건조되고 건조 잔류물은 일반적으로 직경이 0.5 내지 10 mm 범위인 입자를 갖는 균일한 분말로 분해된다. 분말은 바람직하게는, 최종 크기 감소 이전 또는 이후에, 적당한 온도에서 적당한 진공 중 건조되어 임의의 과량의 잔류 알콜을 제거한다. 분말은 적절한 기간 동안 약 90 ~ 150°C 범위의 온도까지 가열되는 경우 자발적으로 팽창되어 밀폐된 셀 폼을 형성한다. 분말이 밀폐된 몰드 내에서 팽창되는 경우, 통합된, 밀폐된 셀 폼 생성물이 생성된다. 비제한적 방식으로 팽창되는 경우, 약 0.4 mm 내지 15 mm의 평균 직경을 갖는 밀폐된 셀 "매크로벌룬"이 생성된다.

[0024] 미국 특허 제 4,518,717호는 낮은 밀도의 개질된 폴리이미드/폴리이미드-아미드 폼의 제조 방법 및 생성되는 조성물에 관한 것이다. N-치환된 지방족 이미드는 적절한 방향족 이무수물을 적절한 옥심과 반응시킴으로써 제조된다. 폴리이미드 형성 물질은 N-치환된 지방족 이미드를 에스테르화 용매에 용해시킨 후, 적절한 방향족 디아민을 첨가함으로써 제조된다. 상기 물질은 분말로 건조된다. 약 100°C 이상까지 안정한 적절한 수화된 화합물이 분말과 혼합된다. 그 후, 폼은 안정한 폼을 제조하기에 충분한 기간 동안 물질을 반응 온도까지 가열시킴으로써 제조된다. 물질은 용융된 후, 자가 지지성이 되는 폼으로 자발적으로 팽창되고 탄성 가요성 폼으로 경화된다. 수화된 화합물의 첨가는 유난히 낮은 밀도의 폼을 야기하는 것으로 관측된다. 가열 조건에 따라, 폴리이미드, 폴리이미드-아미드 또는 이의 혼합물이 제조되어, 선택적으로 다양한 물리적 특성을 갖는 폼을 야기할 수 있다.

[0025] 미국 특허 제 4,161,477호, 4,183,838호, 및 4,183,839호는 난연성이고 코팅 및 접착체로서 유용한 특정 폴리이미드 조성물에 관한 것이다. 상기 언급된 특허에 기술된 코팅 및 접착체 조성물은 방향족 테트라카르복실산 이무수물을 환형 아미드 또는 옥심과 반응시킴으로써 적절한 비스이미드를 먼저 제조함으로써 제조된다.

[0026] 그러나, 통상의 폼과 유사한 밀도를 갖는 선택틱 폼의 제조에 있어서 어려움이 있어 왔다. 선택틱 폼의 전형적인 밀도는 0.3 내지 0.5 g/cm³인 반면, 통상의 폼은 전형적으로 0.01 내지 0.1 g/cm³이다. 선택틱 폼의 밀도는 일반적으로 폼의 제한된 다공성에 의해 한정되어 왔다. 다공성은 선택틱 폼의 총 공극 부피 (예를 들어, 공기

충전, 가스 충전, 또는 낮은 밀도 성분의 존재)의 척도이고, 미세구의 공극 부피 및 간질 공극 부피의 합을 구성한다. 현행 선택틱 폼 제조 방법의 이용하에서는, 미세구에 의해 제공된 공극 부피가 간질 공간에 의해 제공된 공극 부피보다 더 크다. 따라서, 선택틱 폼의 밀도는 미세구의 공극 부피에 의해 제한되어 왔다. 이로써, 선택틱 폼의 용도는 제한되어 왔다.

[0027] 상기 및 본 출원에 걸쳐 언급된 특허 및 공보는 그 전문이 참고로 인용되고 본 출원의 일부를 형성한다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0028] **발명의 개요**

[0029] 본 발명의 특징은 선택틱 폼을 형성하기 위한 목적으로 공동 유리 또는 중합체 미세구 이외의 물질을 사용하는 복합체를 제공하는 것이다.

[0030] 본 발명의 또다른 특징은 낮은 열 전도도, 및 낮은 복합체 밀도를 갖는 복합체, 예컨대 선택틱 폼을 제공하는 것이다.

[0031] 본 발명의 추가의 특징은 중합체 복합체 중 에어로겔을 사용하여 에어로겔로 기인하는 바람직한 특성, 예컨대 낮은 밀도, 낮은 열 전도도, 낮은 전기 전도도, 낮은 유전율 및/또는 충격 흡수성, 및/또는 광 투과율을 달성하는 방법을 제공하는 것이다.

[0032] 본 발명의 또다른 특징은 낮은 열 전도도를 가지며 동등한 또는 더 큰 압축 강도일 수 있는 복합체, 예컨대 선택틱 폼을 제공하는 것이다.

[0033] 본 발명의 추가의 특징 및 이점은 부분적으로는 하기 명세서에 제공될 것이고, 부분적으로는 명세서로부터 명백할 것이거나, 또는 본 발명의 실행에 의해 습득될 수 있다. 본 발명의 목적 및 기타 이점은, 특히 명세서 및 첨부되는 특허청구범위에 지적된 요소 및 조합물에 의해 실행되고 달성될 수 있다.

과제의 해결 수단

[0034] 상기 및 기타 이점을 달성하기 위하여, 그리고 본원에서 구현되고 광범위하게 기술된 본 발명의 목적에 따라, 본 발명은 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리 및 1종 이상의 에어로겔을 포함하는 복합체에 관한 것이다. 하나 이상의 실시양태에서, 중합체, 세라믹 및/또는 유리는 바람직하게는 복합체 중 매트릭스 또는 연속상으로서 제공된다. 일반적으로 기공 (pore)을 갖는 에어로겔은, 전체가 아닌 경우, 적어도 부분적으로, 중합체, 세라믹 및/또는 유리가 기공으로 침입하는 것을 실질적으로 방지하기 위한 하나 이상의 코팅으로 코팅된 표면이다. 바람직하게는, 에어로겔 상의 코팅은, 오로지 외부 에어로겔 입자 표면 상에만 존재하여, 이에 따라 기공을 밀폐하나 에어로겔의 내부 기공 부피로 침투되지 않는 얇은 코팅층 및 코팅이다. 하나 이상의 실시양태에서, 코팅은 중합체, 세라믹 및/또는 유리, 뿐만 아니라 기타 물질이, 에어로겔의 내부 기공 부피로 들어가는 것을 방지한다. 상기 코팅을 제공함으로써, 에어로겔의 특성이 유지되어, 이에 따라 중합체, 세라믹 및/또는 유리 매트릭스에 에어로겔을 사용하여, 바람직한 특성, 예컨대 낮은 밀도 및 바람직한 열 전도도를 달성하는 것을 가능하게 한다.

[0035] 대안으로, 소수성 에어로겔이 사용되는 경우, 중합체가 용해, 분산, 유화, 또는 혼합된 수성계가 사용되어 중합체가 기공 부피로 최소한으로 침투되게 하는 복합체를 형성할 수 있다.

[0036] 본 발명은 또한 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리 및 1종 이상의 처리된 에어로겔을 포함하는 복합체에 관한 것이다. 일반적으로 기공을 갖는 에어로겔은, 전체가 아닌 경우, 적어도 부분적으로 처리제로 처리된다. 처리된 에어로겔은 다공성으로 유지된다. 하나 이상의 실시양태에서, 처리된 에어로겔을 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리로 도입시, 매트릭스의 중합체, 세라믹 및/또는 유리는, 예를 들어, 에어로겔의 소수성 특성으로 인하여, 처리된 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는다. 처리된 에어로겔은 에어로겔이 중합체, 세라믹 및/또는 유리 매트릭스에 분포, 분산 또는 도입되는 능력을 제공한다.

[0037] 본 발명은 또한 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리 및 1종 이상의 처리된 에어로겔을 포함하는 복합체에 관한 것이다. 일반적으로 기공을 갖는 에어로겔은, 전체가 아닌 경우, 적어도 부분적으로 처리제로 처리된다. 처리된 에어로겔은 다공성으로 유지된다. 하나 이상의 실시양태에서, 처리된 에어로겔을 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리로 도입시, 매트릭스의 중합체, 세라믹 및/또는 유리는, 예를 들어, 에어로겔의 소수성 특

성으로 인하여, 처리된 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는다. 처리된 에어로겔은 에어로겔이 중합체, 세라믹 및/또는 유리 매트릭스에 분포, 분산 또는 도입되는 능력을 제공한다.

- [0038] 하나 이상의 실시양태에서, 본 발명은 매트릭스로서의 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리 및 1종 이상의 에어로겔을 포함하는 복합체에 관한 것이다. 복합체는 다수의 용도에 이용될 수 있다. 예를 들어, 복합체는 선택적 흡수할 수 있다. 에어로겔은 처리된 에어로겔 및/또는 코팅된 에어로겔일 수 있다. 처리제 및/또는 코팅제는 상기 처리제 또는 코팅제를 에어로겔에 전달하기 위해 수성 용매 또는 유기 용매 중 존재할 수 있다. 중합체, 세라믹 및/또는 유리 매트릭스는, 수성 또는 비수성인 용매 중 존재할 수 있다.
- [0039] 또다른 실시양태에서, 본 발명은 기공을 갖는 에어로겔에 관한 것이고, 여기서 상기 에어로겔의 적어도 일부는 중합체, 세라믹 및/또는 유리가 에어로겔의 기공으로 침입하는 것을 실질적으로 방지하기 위해 코팅으로 적어도 부분적으로 코팅된다.
- [0040] 하나 이상의 실시양태에서 본 발명은, 또한 에어로겔의 표면 상에 하나 이상의 코팅을 형성한 후 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리와 혼합하여, 선택적 흡수할 수 있는 본 발명의 복합체를 형성함으로써 본 발명의 복합체를 제조하는 방법에 관한 것이다.
- [0041] 본 발명은, 또한, 에어로겔의 표면을 1종 이상의 화학 물질, 예컨대 계면활성제 또는 습윤제 또는 양친매성 물질로 처리한 후, 처리된 에어로겔을 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리와 혼합하여, 선택적 흡수할 수 있는 본 발명의 복합체를 형성함으로써 본 발명의 복합체를 제조하는 방법에 관한 것이다.
- [0042] 또한, 본 발명은 에어로겔의 표면을 1종 이상의 화학 물질, 예컨대 1종 이상의 계면활성제 및/또는 습윤제로 처리하여 처리된 에어로겔을 형성한 후 처리된 에어로겔을 하나 이상의 코팅으로 코팅하여 코팅되고, 처리된 에어로겔을 형성한 후 코팅 및 처리된 에어로겔을 1종 이상의 중합체, 세라믹 및/또는 유리와 혼합하여, 선택적 흡수할 수 있는 본 발명의 복합체를 형성함으로써 본 발명의 복합체를 제조하는 방법에 관한 것이다.
- [0043] 본 발명은 또한 본 발명의 복합체의 용도, 비제한적인 예로서, 해저 파이프라인 절연, 및 상기 기술한 용도에 관한 것이다.

발명의 효과

- [0044] 본 발명에 따르면 낮은 밀도, 낮은 열 전도도, 낮은 전기 전도도, 낮은 유전율 및/또는 충격 흡수성, 및/또는 광 투과율을 달성할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0045] 도 1은 중합체 코팅을 갖는 에어로겔 입자인 본 발명의 하나의 실시양태의 현미경 사진이다.
- 도 2는 본 발명의 반응성-계면활성제 에폭시 방법의 간소화된 증명을 제공하는 개략도이다.
- 도 3은 1차 및 2차 아민기를 갖는 몇몇 계면활성제의 화학적 구조이다.
- 도 4는 에어로겔 입자의 코팅용 나일론의 중합에 대한 반응식이다.
- 도 5는 계면활성제로 적셔진 입자를 포함하는 입자를 핵산 중 5% v/v의 세바코일 클로라이드의 용액에 침지된 물 층으로 코팅하는 것에 대한 개략도이다.
- 도 6은 개별 입자의 나일론 코팅을 도시하는 개략도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0046] 본 발명은 하기 번호 매겨진 하기 실시양태를 포함하나 이에 국한되지는 않는다:
- [0047] 1. 매트릭스로서의 1종 이상의 중합체 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 여기서 중합체는 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는 복합체.
- [0048] 2. 제1 실시양태에 있어서, 매트릭스로서의 1종 이상의 중합체 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 에어로겔의 적어도 일부는 중합체가 기공으로 침입하는 것을 실질적으로 방지하는 코팅으로 적어도 부분적으로 코팅된 복합체.
- [0049] 3. 제1 또는 제2 실시양태에 있어서, 에어로겔의 적어도 일부가 1종 이상의 처리제로 처리되어 실질적으로 다공

성으로 유지되는 처리된 에어로겔을 형성하는 복합체.

- [0050] 4. 제1 내지 제3 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 선택틱 폼인 복합체.
- [0051] 5. 제1 내지 제4 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 1종 이상의 중합체가 폴리우레탄인 복합체.
- [0052] 6. 제1 내지 제5 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 1종 이상의 중합체가 에폭시드 수지인 복합체.
- [0053] 7. 제1 내지 제6 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 1종 이상의 중합체가 폴리프로필렌 또는 폴리에틸렌 또는 모두인 복합체.
- [0054] 8. 제2 내지 제7 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔이 표면 및 내부 기공 부피를 가지며, 코팅이 에어로겔의 표면 상에 존재하여, 이에 따라 기공을 밀폐하나 에어로겔의 내부 기공 부피로 침투되지 않는 복합체.
- [0055] 9. 제2 내지 제8 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔이 내부 기공 부피를 가지며, 코팅에 의해 1종 이상의 중합체가 에어로겔의 내부 기공 부피로 유입되는 것이 방지되는 복합체.
- [0056] 10. 제2 내지 제9 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔 상의 코팅이 중합체 코팅인 복합체.
- [0057] 11. 제2 내지 제10 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 1종 이상의 친지질성 중합체를 포함하는 복합체.
- [0058] 12. 제2 내지 제11 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 습윤제 또는 계면활성제를 포함하는 복합체.
- [0059] 13. 제2 내지 제12 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 왁스, 또는 유리 또는 세라믹과 같은 무기 물질인 복합체.
- [0060] 14. 제2 내지 제13 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔 상의 표면 코팅으로 이루어진 복합체.
- [0061] 15. 제2 내지 제14 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 기공 사이를 연결하는 복합체.
- [0062] 16. 제1 내지 제15 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 중합체가 유기 중합체이고 코팅이 수계 (water-based) 중합체 코팅인 복합체.
- [0063] 17. 제2 내지 제16 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 중합체가 수계 중합체이고 코팅이 계면활성제 또는 습윤제를 포함하는 복합체.
- [0064] 18. 제1 내지 제17 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔의 표면 하부에 10% 이하로 침투하고, 여기서 백분율은 에어로겔의 평균 직경 기준인 복합체.
- [0065] 19. 분립 밀 (classifier mill)에서 에어로겔을 1종 이상의 코팅 물질로 코팅하여 코팅된 에어로겔을 형성한 후 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 비경화된 중합체와 배합한 후 중합체를 경화시켜 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제1 내지 제18 또는 제40 내지 제56, 또는 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0066] 20. 미립자를 에어로겔 상에 코팅하고 에어로겔을 가열하여 미립자를 용융시켜 에어로겔 상에 층을 형성함으로써 에어로겔을 코팅한 후 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 비경화된 중합체와 배합한 후 중합체를 경화시켜 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제1 내지 제19 또는 제40 내지 제56, 또는 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0067] 21. 에어로겔을 수성 용매에 용해되거나 분산되거나 유화된 제 1 반응물을 포함하는 수성계 용액으로 코팅한 후 제 2 반응물을 함유하는 무극성 용매를 수성계 용액으로 코팅된 에어로겔에 첨가한 후, 무극성 용매를 제거하여 제 1 및 제 2 반응물의 반응 생성물을 수득하여 코팅된 에어로겔을 형성한 후, 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 비경화된 중합체와 배합한 후 중합체를 경화시켜 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제1 내지 제19 또는 제40 내지 제56, 또는 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0068] 22. 제4 실시양태의 선택틱 폼에 의해 절연된 파이프를 포함하는 절연된 파이프.
- [0069] 23. 제1 내지 제18 또는 제40 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체를 포함하는 물품.
- [0070] 24. 제1 내지 제18 또는 제40 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체를 포함하는 절연 물질.
- [0071] 25. 에어로겔이 적어도 부분적으로 하나 이상의 코팅으로 코팅되어 중합체가 기공으로 침입하는 것이 실질적으로 방지되는, 기공을 갖는 에어로겔을 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0072] 26. 제25 실시양태에 있어서, 코팅이 표면 및 내부 기공 부피를 가지며, 코팅이 에어로겔의 표면 상에

존재하여, 이에 따라 기공을 밀폐하나 에어로겔의 내부 기공 부피로 침투되지 않는 코팅된 에어로겔.

- [0073] 27. 제25 또는 제26 실시양태에 있어서, 코팅이 내부 기공 부피를 가지며, 코팅에 의해 중합체가 에어로겔의 내부 기공 부피로 유입되는 것이 방지되는 코팅된 에어로겔.
- [0074] 28. 제25 내지 제27 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔 상의 코팅이 중합체 코팅인 코팅된 에어로겔.
- [0075] 29. 제25 내지 제28 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 1종 이상의 친지질성 중합체를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0076] 30. 제25 내지 제29 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 습윤제 또는 계면활성제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0077] 31. 제25 내지 제30 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 왁스, 또는 유리 또는 세라믹과 같은 무기 물질인 코팅된 에어로겔.
- [0078] 32. 제25 내지 제31 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔 상의 표면 코팅으로 이루어진 코팅된 에어로겔.
- [0079] 33. 제25 내지 제32 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 기공 사이를 연결하는 코팅된 에어로겔.
- [0080] 34. 제25 내지 제33 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 유기 중합체이고 코팅이 수계 중합체 코팅인 코팅된 에어로겔.
- [0081] 35. 제25 내지 제34 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 수계 중합체이고 코팅이 계면활성제 또는 습윤제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0082] 36. 제25 내지 제35 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔의 표면 하부에 10% 이하로 침투하고, 여기서 백분율은 에어로겔의 평균 직경 기준인 코팅된 에어로겔.
- [0083] 37. 제25 내지 제36 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅 및 에어로겔 사이에 존재하는 처리제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0084] 38. 제25 내지 제37 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 2 이상의 코팅을 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0085] 39. 제38 실시양태에 있어서, 제 1 코팅이 중합체의 기공으로의 침입을 실질적으로 방지하고, 하나 이상의 제 2 코팅이 코팅된 에어로겔에 한 가지 이상의 기능적 특성을 제공하는 코팅된 에어로겔.
- [0086] 40. 매트릭스로서의 1종 이상의 세라믹 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 세라믹은 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는 복합체.
- [0087] 41. 매트릭스로서의 1종 이상의 유리 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 유리는 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는 복합체.
- [0088] 42. 매트릭스로서의 1종 이상의 무기 물질 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 무기 물질은 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는 복합체.
- [0089] 43. 매트릭스로서의 1종 이상의 세라믹 및/또는 유리 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 세라믹 및/또는 유리는 에어로겔의 기공으로 실질적으로 유입되지 않는 복합체.
- [0090] 44. 제43 실시양태에 있어서, 매트릭스로서의 1종 이상의 세라믹 및/또는 유리 및 기공을 갖는 1종 이상의 에어로겔을 포함하며, 에어로겔의 적어도 일부는 세라믹 및/또는 유리가 기공으로 침입하는 것을 실질적으로 방지하는 코팅으로 적어도 부분적으로 코팅된 복합체.
- [0091] 45. 제43 또는 제44 실시양태에 있어서, 에어로겔의 적어도 일부가 1종 이상의 처리제로 처리되어 실질적으로 다공성으로 유지되는 처리된 에어로겔을 형성하는 복합체.
- [0092] 46. 제43 내지 제45 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 선택적 품인 복합체.
- [0093] 47. 제44 내지 제46 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔이 표면 및 내부 기공 부피를 가지며, 코팅이 에어로겔의 표면 상에 존재하여, 이에 따라 기공을 밀폐하나 에어로겔의 내부 기공 부피로 침투되지 않는 복합체.
- [0094] 48. 제44 내지 제47 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔이 내부 기공 부피를 가지며, 코팅에 의해 1종

이상의 세라믹 및/또는 유리가 에어로겔의 내부 기공 부피로 유입되는 것이 방지되는 복합체.

- [0095] 49. 제44 내지 제48 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔 상의 코팅이 중합체 코팅인 복합체.
- [0096] 50. 제44 내지 제49 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 1종 이상의 친지질성 중합체를 포함하는 복합체.
- [0097] 51. 제44 내지 제50 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 습윤제 또는 계면활성제를 포함하는 복합체.
- [0098] 52. 제44 내지 제51 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 왁스, 또는 유리 또는 세라믹과 같은 무기 물질인 복합체.
- [0099] 53. 제45 내지 제53 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔 상의 표면 코팅으로 이루어진 복합체.
- [0100] 54. 제44 내지 제53 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 기공 사이를 연결하는 복합체.
- [0101] 55. 제44 내지 제54 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 수계 중합체 코팅인 복합체.
- [0102] 56. 제44 내지 제55 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 계면활성제 또는 습윤제를 포함하는 복합체.
- [0103] 57. 제44 내지 제56 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔의 표면 하부에 10% 이하로 침투하고, 여기서 백분율은 에어로겔의 평균 직경 기준인 복합체.
- [0104] 58. 분립 밀에서 에어로겔을 1종 이상의 코팅 물질로 코팅하여 코팅된 에어로겔을 형성한 후 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 세라믹 및/또는 유리와 배합한 후 중합체를 경화시켜 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제43 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0105] 59. 미립자를 에어로겔 상에 코팅하고 에어로겔을 가열하여 미립자를 용융시켜 에어로겔 상에 층을 형성함으로써 에어로겔을 코팅한 후 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 세라믹 및/또는 유리와 배합하여 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제43 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0106] 60. 에어로겔을 수성 용매에 용해되거나 분산되거나 유화된 제 1 반응물을 포함하는 수성계 용액으로 코팅한 후 제 2 반응물을 함유하는 무극성 용매를 수성계 용액으로 코팅된 에어로겔에 첨가한 후, 무극성 용매를 제거하여 제 1 및 제 2 반응물의 반응 생성물을 수득하여 코팅된 에어로겔을 형성한 후, 코팅된 에어로겔을 1종 이상의 유리 및/또는 세라믹과 배합하여 복합체를 형성하는 것을 포함하는, 제43 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체의 제조 방법.
- [0107] 61. 제46 실시양태의 선택적 폼에 의해 절연된 파이프를 포함하는 절연된 파이프.
- [0108] 62. 제43 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체를 포함하는 물품.
- [0109] 63. 제43 내지 제57 실시양태 중 어느 하나의 복합체를 포함하는 절연 물질.
- [0110] 64. 에어로겔이 적어도 부분적으로 하나 이상의 코팅으로 코팅되어 세라믹 및/또는 유리의 기공으로의 침입을 실질적으로 방지하는, 기공을 갖는 에어로겔을 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0111] 65. 제64 실시양태에 있어서, 코팅이 표면 및 내부 기공 부피를 갖고 코팅이 에어로겔의 표면 상에 존재하여, 이에 따라 기공을 밀폐하나 에어로겔의 내부 기공 부피로 침투되지 않는 코팅된 에어로겔.
- [0112] 66. 제64 또는 제65 실시양태에 있어서, 코팅이 내부 기공 부피를 갖고 코팅이 세라믹 및/또는 유리로 하여금 에어로겔의 내부 기공 부피로 유입되는 것을 방지하는 코팅된 에어로겔.
- [0113] 67. 제64 내지 제66 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 에어로겔 상의 코팅이 중합체 코팅인 코팅된 에어로겔.
- [0114] 68. 제64 내지 제67 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 1종 이상의 친지질성 중합체를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0115] 69. 제64 내지 제68 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 습윤제 또는 계면활성제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0116] 70. 제64 내지 제69 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 왁스, 또는 유리 또는 세라믹과 같은 무기 물질인 코팅된 에어로겔.
- [0117] 71. 제64 내지 제70 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔 상의 표면 코팅으로 이루어진 코팅된 에어로겔.

- [0118] 72. 제64 내지 제71 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 기공 사이를 연결하는 코팅된 에어로겔.
- [0119] 73. 제64 내지 제72 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 유기 중합체인 코팅된 에어로겔.
- [0120] 74. 제64 내지 제73 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 수계 중합체이고 코팅이 계면활성제 또는 습윤제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0121] 75. 제64 내지 제74 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅이 에어로겔의 표면 하부에 10% 이하로 침투하고, 여기서 백분율은 에어로겔의 평균 직경 기준인 코팅된 에어로겔.
- [0122] 76. 제64 내지 제75 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 코팅 및 에어로겔 사이에 존재하는 처리제를 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0123] 77. 제64 내지 제76 실시양태 중 어느 하나에 있어서, 2 이상의 코팅을 포함하는 코팅된 에어로겔.
- [0124] 78. 제77 실시양태에 있어서, 제 1 코팅이 세라믹 및/또는 유리의 기공으로의 침입을 실질적으로 방지하고, 하나 이상의 제 2 코팅이 코팅된 에어로겔에 한 가지 이상의 기능적 특성을 제공하는 코팅된 에어로겔.
- [0125] 제1 내지 제78 실시양태에 언급된 복합체, 방법, 물품 또는 코팅된 에어로겔 중 임의의 것에 있어서, 에어로겔은 유기 변형된 실리카 (ormosil) 에어로겔일 수 있음이 주목되어야 한다.
- [0126] 전술한 일반적 설명 및 하기 상세한 설명은 오로지 예시적 및 설명적인 것이고, 청구되는 바와 같은, 본 발명에 대한 추가의 설명을 제공하기 위한 의도임이 이해될 것이다.
- [0127] <발명의 상세한 설명>
- [0128] 본 발명은 처리된 에어로겔 및/또는 코팅된 에어로겔에 관한 것이다. 처리된 에어로겔 및/또는 코팅된 에어로겔은 1종 이상의 중합체를 갖는 복합체의 형성에 사용되는 것을 비롯한 다수의 용도에 사용될 수 있다. 본 발명은 또한 에어로겔을 함유하는 복합체에 관한 것이다. 본 발명은 또한 상기 복합체의 제조 방법, 뿐만 아니라 상기 복합체의 용도에 관한 것이다. 더 구체적으로, 본 발명은 1종 이상의 중합체 및 1종 이상의 에어로겔을 함유하는 복합체에 관한 것이다. 일반적으로, 복합체 중 중합체는 매트릭스 또는 연속상 또는 결합체로서 존재한다. 중합체 대신, 또는 이와 함께, 매트릭스 (또는 연속상 또는 결합체)는 또한 1종 이상의 무기 물질, 예를 들어, 유리 및/또는 세라믹(들)을 포함할 수 있다. 에어로겔은 상기 연속상에 분산되거나 또는 존재한다. 에어로겔은 균일하게 또는 불균일하게, 또는 무작위로 존재할 수 있다. 본 발명에 있어서, 에어로겔은 하나 이상의 코팅 또는 층으로 코팅되어 매트릭스 물질 (예를 들어, 1종 이상의 중합체, 및/또는 무기 물질, 비제한적인 예로서, 세라믹, 유리 또는 이의 조합물)의 에어로겔 기공으로의 침입을 실질적으로 방지할 수 있다. 추가로 또는 대안으로, 에어로겔은 처리제로 처리되어 처리된 에어로겔을 형성할 수 있다. 처리제는, 예를 들어, 1종 이상의 계면활성제 및/또는 습윤제일 수 있다. 또한, 에어로겔은 먼저 처리되어 처리된 에어로겔을 형성한 후 코팅되어 코팅되고, 처리된 에어로겔을 형성할 수 있다. 대안으로, 에어로겔은 먼저 코팅되어 코팅된 에어로겔을 형성한 후 이어서 처리되어 처리 및 코팅된 에어로겔을 형성할 수 있다. 처리제 및 코팅의 구체에는 하기에 더 상세하게 설명되어 있다.
- [0129] 중합체에 관하여, 복합체는 1종 이상의 중합체, 예컨대 2, 3, 4종, 또는 그 이상의 상이한 유형의 중합체를 함유할 수 있다. 일반적으로, 중합체는 1종 이상의 유형의 단량체 단위의 반복 단위로 이루어진다. 중합체는 저분자량 중합체 또는 고분자량 중합체일 수 있다. 중합체는 가교된 중합체일 수 있다. 중합체는 열가소성 또는 열경화성 중합체일 수 있다. 중합체는 무기 중합체 또는 유기 중합체일 수 있다. 복합체의 중합체 매트릭스 또는 연속상을 형성할 수 있는 중합체의 유형에 대한 제약이 없다. 1종 초과 중합체가 연속상을 형성할 수 있다. 중합체는 연속상을 형성하는 중합체의 블렌드일 수 있다. 1종 초과 중합체가 존재하는 경우, 1종의 중합체는 연속상을 형성하고 1종 이상의 기타 중합체는 불연속상으로서 존재할 수 있거나 또는 1종 초과 중합체가 연속상을 형성한다. 일부 실시양태에서, 임의의 유형의 중합체 매트릭스가 본 발명에 사용될 수 있다. 일반적으로, 매트릭스 또는 연속상을 형성하는 중합체(들)는 복합체의 중량% 및/또는 부피의 대부분을 이룰 수 있다. 예를 들어, 하나 이상의 실시양태에서, 중합체(들)는 복합체의 약 20 중량% 내지 약 99 중량%, 더 바람직하게는 복합체의 약 50 중량% 내지 약 99 중량%, 또는 약 80 중량% 내지 약 99 중량%를 형성할 수 있다.
- [0130] 중합체는 수계 중합체 또는 유기계 중합체 또는 무기 중합체일 수 있다. 본 발명의 선택적 품의 제조 방법에 사용되는 중합체는 선택적 품의 제조에 효과적으로 이용되는 임의의 수지일 수 있다. 선택적 품의 제조에 사용되는 수지 종류의 비제한적인 예로서 아미노 수지, 에폭시드 수지, 페놀 및 기타 타르산 수지, 우레아 및 멜라

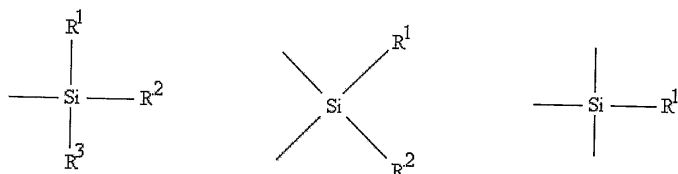
민 수지, 비닐 수지, 스티렌 수지, 알키드 수지, 아크릴 수지, 폴리이소시아네이트, 폴리에틸렌 수지, 폴리프로필렌 수지, 석유 중합체 수지, 폴리아미드 수지, 폴리카르보네이트 수지, 아세틸 수지, 플루오로히드로카본 수지, 폴리에스테르 수지 및 폴리우레탄 수지를 들 수 있다. 또한, 중합체는 수용성 공중합체, 예컨대 폴리(N-비닐피롤리돈-비닐 아세테이트)일 수 있다. 특히 바람직한 수지는 페놀 수지이다. 약학적 허용 단일중합체 수지가 본 발명에 사용하기에 적절할 수 있고, 알릴 슈크로오스 또는 알릴 펜타에리트리톨과 가교된 아크릴산의 단일중합체, 디비닐 글리콜과 가교된 아크릴산의 단일중합체, 아크릴산과 5,000,000 내지 100 억의 분자량을 갖는 알릴 펜타에리트리톨과 가교된 장쇄 알킬 아크릴레이트 공단량체와의 단일중합체를 들 수 있다. B. F. 굿리치 코퍼레이션 (B. F. Goodrich Co.)으로부터 상표명 Carbopol® 및 Noveon® 수지로 이용가능한 가교된 폴리아크릴산, 예컨대 Noveon® AA-I USP, Carbopol® 971P NF, Carbopol® 934P NF, 및 Carbopol® 974P NF가 사용될 수 있다.

[0131] 또한, 선택사항으로서, 1종 이상의 가교제가 복합체 제형물 중 존재할 수 있다. 중합체의 특성에 따라, 중합체는 중합체 물질의 응결을 야기하는 가교제 또는 경화제를 포함할 수 있다. 중합체가 응결을 위한 가교제를 포함하는 경우, 경화제 대 중합체의 중량비는 1:10인 것이 바람직하다. 경화제 대 중합체의 비는 중합체의 유형 및 바람직한 가교의 정도에 따라 다양할 수 있다. 예를 들어, 증가된 양의 경화제는 저온 경화를 가능하게 하고 겔화의 속도를 높일 것이다. 경화제 대 중합체의 상대적 양을 5:100만큼 낮은 중량비까지 감소시키는 것도 가능하나, 더 높은 경화 온도 및 더 긴 겔화 시간이 요구될 수 있다.

[0132] 임의의 에어로겔이 본 발명에 사용될 수 있다. 에어로겔은 임의의 형태, 예컨대 필름, 박막, 단일체, 파괴되거나 균열된 단일체, 입자, 블랭킷 (blanket), 매트, 배팅 (batting), 및/또는 이의 기타 섬유 보강 형태로 존재할 수 있다. 예를 들어, 에어로겔은 미립자 형태로 존재할 수 있다. 에어로겔은 특정 목적 사용 용도에 따라 입자, 응집체, 과립, 클러스터, 및 더 큰 형태일 수 있다. 에어로겔은 소수성 에어로겔일 수 있거나 또는 친수성 에어로겔일 수 있거나 또는 혼합물일 수 있다. 하나 이상의 실시양태에서, 본 발명에 사용하기에 바람직한 에어로겔은 졸-겔 기술에 적절한 금속 옥시드 기재의 것 (문헌 [C. J. Brinker, G. W. Scherer, Sol-Gel Science. 1990, Chaps. 2 and 3]), 예컨대 Si 또는 Al 화합물, 또는 졸-겔 기술에 적절한 유기 물질의 기재의 것, 예컨대 말레아민-포름아미드 축합물 (미국 특허 제 5,086,085호) 또는 레조르시놀-포름아미드 축합물 (미국 특허 제 4,873,218호)이다. 이는 또한 상기 언급한 물질의 혼합물 기재일 수 있다. 에어로겔은 또한 본원에서 그 전문을 참고로 인용하는, 미국 특허 공보 제 2005/0192366호 또는 2005/0192367호에 기술된 유형의 유기 변형된 실리카 에어로겔일 수 있다. 바람직하게는, 규소 (Si) 및/또는 기타 원소, 예컨대 Ti, W, Zr 등을 함유하는 에어로겔 또는 이의 화합물, 및 바람직하게는 SiO₂가 사용될 수 있다. 열 전도도에 대한 방사성 기여를 감소시키기 위하여, 에어로겔은 IR 유백제, 예컨대 카본 블랙, 이산화티탄, 산화철, 또는 이산화지르코늄, 또는 이의 혼합물을 함유할 수 있다. 에어로겔은 이것이 슬러리 내부에 분산되는 것을 가능하게 하는 임의의 입자 크기를 가질 수 있다. 에어로겔은 각종 입자 크기 분포를 가질 수 있다. 에어로겔은 분쇄된 분말의 형태일 수 있다.

[0133] 하나 이상의 실시양태에서, 임의의 시판되는 소수성 또는 친수성 에어로겔이 본 발명에 사용될 수 있다. 비제한적인 예로서, 캐보트 코퍼레이션 (Cabot Corporation)으로부터 시판되는 에어로겔을 들 수 있다. 특정 시판 유형의 비제한적인 예로서, 나노겔® 에어로겔을 들 수 있다. 본 발명, 및 특히 본 발명과 함께 이용된 바람직한 공정의 이점은 에어로겔이 예비 성형되어 따라서 임의의 바람직한 구조, 형태, 또는 기타 특징이 선택될 수 있으며, 상기 특징은 본질적으로 최종 생성물에 존재한다는 점이다.

[0134] 본 발명에 사용되는 에어로겔 입자는 소수성 표면을 가질 수 있다. 기공 내부의 수분 응축에 의한 에어로겔의 임의의 잇따른 붕괴를 피하기 위하여, 소수성기는 에어로겔의 적어도 내부 표면에 공유 결합되는 것이 바람직하다. 영구적 소수화에 바람직한 기는 하기 화학식의 1, 2, 또는 3 치환된 실릴기이다:



[0135] 상기 식 중, R¹은 수소 또는 비반응성 선형, 분지형, 환형, 방향족, 또는 헤테로방향족 유기 라디칼, 바람직하게는 선형, 분지형, 또는 환형 C₁ - C₁₈ -알킬 라디칼 또는 C₆ - C₁₄ -아릴 라디칼이다. 동일하거나 상이할 수

있는 R² 및 R³는 수소 또는 비반응성 선형, 분지형, 환형, 방향족, 또는 헤테로방향족 유기 라디칼, 바람직하게는 선형, 분지형, 또는 환형 C₁ - C₁₈ -알킬 라디칼, C₆ - C₁₄ -아릴 라디칼, OH 또는 OR' 기이고, 여기서 R'는 선형 또는 분지형 C₁ - C₆ -알킬 라디칼; 바람직하게는 트리알킬기 및/또는 트리아릴실릴기이다. 더 바람직하게는, 동일하거나 상이할 수 있는 R¹, R², 및 R³은 C₁ - C₆ -알킬, 시클로헥실 또는 페닐이다.

[0137] 트리메틸기 및 디메틸실릴기를 에어로겔의 영구적 소수화에 사용하는 것이 특히 유리할 수 있다. 상기 기는 WO 94/25149 (그 전문을 본원에서 참고로 인용함)에 기술된 바와 같이 또는 에어로겔, 및, 예를 들어, 활성화된 트리알킬실란 유도체, 예컨대 클로로트리알킬실란 또는 헥사알킬디실라잔의 기상 반응에 의해 (문헌 [R. Iler, The Chemistry of Silica, Wiley & Sons, 1979] 참고) 도입될 수 있다.

[0138] 더욱이 그리고 특정 제약 내에서, 에어로겔의 열 전도도는 다공성이 증가하고 밀도가 감소함에 따라 감소할 수 있다. 이러한 이유로, 약 60% 초과와 다공성 및 약 0.8 g/cc 미만의 밀도를 갖는 에어로겔이 바람직하다. 더 바람직하게는, 본 발명의 에어로겔은 약 0.01 내지 약 0.15 g/cc의 밀도를 갖는다. 에어로겔 입자의 열 전도도는 100 mW/m² K 미만 또는 약 40 mW/m² K 미만, 바람직하게는 약 25 mW/m² K 미만일 수 있고, 더 바람직하게는, 에어로겔 입자의 열 전도도는 약 12 내지 약 18 mW/m² K, 또는 그 이하이다. 본 발명의 목적상, 열 전도도는 12.5°C의 평균 온도 또는 12.5°C 내지 30°C와 같은 상온에서의 측정에 기초한다.

[0139] 에어로겔은 이것이 중합체 매트릭스 내부에 분산되는 것을 가능하게 하는 임의의 입자 크기, 예컨대 약 2 nm 내지 5 mm 또는 40 nm 내지 1 mm, 또는 10 μm 내지 1 mm를 가질 수 있다. 에어로겔은 각종 입자 크기 분포를 가질 수 있다. 에어로겔은 분쇄된 분말의 형태로 존재할 수 있다.

[0140] 에어로겔은 전체 복합체의 특정 밀도 및/또는 열 전도도를 달성하기 위한 임의의 소정의 양으로 존재할 수 있다. 예를 들어, 에어로겔은 전체 복합체의 부피를 기준으로 약 1% 내지 약 99%, 및 더 바람직하게는 약 20% 내지 약 75% 또는 약 20% 내지 약 60%의 양으로 존재할 수 있고, 여기서 부피는, 중합체의 기공으로의 침입 없이, 에어로겔 중 존재하는 가스 기준이다.

[0141] 앞서 설명한 바와 같이, 본 발명의 복합체에 사용되는 에어로겔은 중합체의 에어로겔의 기공으로의 침입 (또는 실질적 침입)을 방지하기 위하여 코팅되거나 캡슐화된다. 본 발명의 목적상 코팅 또는 코팅된 에어로겔 또는 캡슐화된 에어로겔은 매트릭스로부터 에어로겔의 기공으로의 중합체 (또는 기타 상기 기술한 매트릭스 물질, 예컨대 세라믹 및/또는 유리)의 침입 (또는 실질적 침입)을 방지하는 에어로겔 표면 상의 코팅을 말한다. 상기 코팅은 복합체의 매트릭스 또는 연속상으로부터 중합체 (또는 기타 상기 기술한 매트릭스 물질, 예컨대 세라믹 및/또는 유리)의 침입 또는 배출을 방지하기 위하여 에어로겔의 표면 상에 위치하는 외피, 층, 또는 기타 유사한 유형의 구조일 수 있다. 상기 코팅은 임의의 수단, 예컨대 화학적 부착, 흡착 등에 의해 에어로겔의 표면 상에 부착될 수 있다. 코팅을 형성하는 층은 에어로겔에 대한 흡착 또는 화학적 부착 없이 물리적 층으로서 존재할 수 있고, 에어로겔 주위의 이의 캡슐화로 인하여 간단하게 손상되지 않은 채 유지된다. 더 상세하게는, 코팅(들)은 유기 또는 무기 코팅일 수 있다. 예를 들어, 코팅은 중합 물질일 수 있고 1종 이상의 중합체로부터 함유되거나 형성될 수 있다. 코팅은 반응물일 수 있거나 또는 중합성일 수 있거나 또는 중합을 개시할 수 있다. 코팅은 계면활성제 또는 습윤제 기재의 코팅일 수 있다. 코팅의 기타 비제한적인 예로서, 폴리비닐 아세테이트, 에폭시, 또는 나일론을 들 수 있다. 대안으로, 코팅은 왁스 또는 무기 물질, 예컨대 세라믹 또는 유리일 수 있다. 하나 이상의 실시양태에서, 코팅은 습식 코팅으로서 도포되어 에어로겔의 균일한 코팅을 달성한 후 습식 코팅 또는 층은 건조되어 쉽게 제거가능하지 않은 경질 또는 경화된 코팅을 형성한다. 하나 이상의 실시양태에서, 에어로겔 상의 코팅층은 바람직하게는 에어로겔의 기공의 대부분 또는 전부를 차단하여, 복합체를 형성하는 물질의 후속되는 침입에 의해 에어로겔의 기공으로 유입되는 것을 방지하는 역할을 하는 얇은 코팅이다. 일반적으로, 복합체 물질이 에어로겔의 기공, 예컨대 기공의 내부 기공 부피로 완전히 유입되는 것은 바람직하지 않은데, 왜냐하면 이는, 예를 들어, 밀도 감소 및/또는 열 전도도 감소의 관점에서 에어로겔의 사용에 의해 달성된 이점을 헛되게 하기 때문이다. 에어로겔 상의 코팅은 동일한 이유로 에어로겔의 기공으로 깊이 침투되지 않는 것이 바람직하다. 따라서, 본 발명에 사용된 코팅은 바람직하게는 기공 사이를 연결하거나 또는 기공을 차단하거나 또는 에어로겔의 기공을 덮는 것이 바람직할 수 있으나, 바람직하게는 에어로겔의 기공으로 실질적으로 침투되지 않는다. 하나 이상의 실시양태에서, 바람직하게는, 코팅은 에어로겔의 전체 직경의 10% 초과로 침투되지 않는다. 예로서, 에어로겔의 직경이 10 mm인 경우, 바람직하게는 코팅은 에어로겔의 표면 아래로 1 mm 초과로 침투되지 않는다. 에어로겔 상의 코팅은 균일하거나, 실질적으로 균일하거나, 또는 불균일할 수 있다. 다시, 바람직하게는, 균일하든지 또는 불균일하든지, 코팅은 바람직하게는 에어로겔의 표면 상에 노

출된 에어로겔의 기공의 대부분 또는 전부를 차단하거나 연결하여 복합체 물질이 에어로겔의 상기 기공으로 유입되는 것을 방지한다. 바람직하게는, 에어로겔 상의 코팅은 약 100 nm 내지 약 3 mm, 예컨대 약 0.5 μm 내지 약 1 mm, 또는 약 0.5 μm 내지 약 10 μm의 층 두께를 갖는다. 에어로겔 상의 코팅 또는 층은 에어로겔의 캡슐화로서 기능할 수 있다. 상기 캡슐화는 완전한 캡슐화 또는 부분적 캡슐화 (예를 들어, 표면적의 50%, 60%, 75% 이상)일 수 있다. 하기 단락은 에어로겔 상의 각종 코팅 및 코팅의 형성을 기술하며, 이들 실시예는 본 발명을 단지 예시함이 이해될 것이다.

[0142] 코팅 물질의 비제한적인 예로서, 친지질성 중합체, 예컨대 폴리비닐 알콜, 폴리에틸렌 왁스, 스테릭산 등을 들 수 있다. 에어로겔에 도포될 수 있는 코팅은 중합체 코팅, 예컨대 폴리비닐 알콜 (PVA)이다. PVA 코팅은 습식 코팅으로서 도포된 후, 바람직하게는 예를 들어, 100°C에서, 예를 들어 고온 공기의 증기 중 서서히 건조될 수 있다. 예를 들어, PVA 코팅 용액은 PVA의 10% w/w의 수용액일 수 있다. 기타 농도가 이용될 수 있다. 상기 서술한 바와 같이, 본 발명의 에어로겔 입자는 소수성일 수 있고/거나 소수성 표면을 가질 수 있다. 그러나, 소수성 에어로겔 입자는 물에 의해 습윤될 수 없다. 일반적으로, 소수성 에어로겔 입자가 물에 첨가되는 경우, 이는 심지어 격렬한 교반 하에서도, 표면 상에 단지 부유한다. 하나 이상의 실시양태에서, 중합체 복합체 중 소수성 에어로겔 입자의 균질한 분포를 달성하기 위하여, 에어로겔은 코팅되거나 처리되어 수계 중합체, 예컨대 라텍스 또는 아크릴 수지에 도입될 수 있다. 코팅은 1종 이상의 습윤제, 예컨대 1종 이상의 표면 활성제 (예를 들어, 계면활성제), 및/또는 1종 이상의 분산제로부터 형성될 수 있다. 습윤제는 임의의 양식으로 에어로겔의 표면에 도포되고 코팅은 임의로 건조될 수 있다. 에어로겔 상의 코팅은 중합체 매트릭스로 도입되어 복합체를 형성하기 이전에 건조된 코팅 또는 습식 코팅일 수 있다. 분산제는, 예를 들어, 이온성 (음이온성 및 양이온성) 계면활성제, 양쪽성 계면활성제, 비이온성 계면활성제, 고 분자량 계면활성제, 및 고 분자량 화합물 중에서 선택될 수 있다. 음이온성 계면활성제로서, 예를 들어, 알킬 설페이트 및 고급 알킬 에테르 설페이트, 더 구체적으로는, 암모늄 라우릴 설페이트, 및 나트륨 폴리옥시에틸렌 라우릴 에테르 설페이트를 들 수 있다.

[0143] 양이온성 계면활성제로서, 예를 들어, 지방족 암모늄 염 및 아민 염, 더 구체적으로는, 알킬 트리메틸암모늄, 및 폴리옥시에틸렌 알킬 아민을 들 수 있다.

[0144] 양쪽성 계면활성제는, 예를 들어, 베타인 유형, 예컨대 알킬 디메틸 베타인, 또는 옥시도 유형, 예컨대 알킬 디메틸 아민 옥시도일 수 있다.

[0145] 비이온성 계면활성제로서 글리세롤 지방산 에스테르, 프로필렌 글리콜 지방산 에스테르, 소르비탄 지방산 에스테르, 폴리옥시에틸렌 소르비탄 지방산 에스테르, 테트라올레산 폴리옥시에틸렌 소르비톨, 폴리옥시에틸렌 알킬 에테르, 폴리옥시에틸렌 알킬 페닐 에테르, 폴리옥시에틸렌 폴리옥시프로필렌 글리콜, 폴리옥시에틸렌 폴리옥시프로필렌 알킬 에테르, 폴리에틸렌 글리콜 지방산 에스테르, 고급 지방산 알콜 에스테르, 다가 알콜 지방산 에스테르 등을 들 수 있다. 중합체 중 소수성 에어로겔 입자의 균질한 분포는 복합체 물질에 실질적으로 균일한 열 전도도를 제공한다.

[0146] 사용될 수 있는 전형적인 습윤제로서, 예를 들어, AEROSOL OT (나트륨 디-2-에틸헥실설포석시네이트), BARLOX 12i (분지형 알킬디메틸아민 옥시드), TRITON 100 (옥틸페녹시폴리에톡시(9-10)에탄올), TWEEN 계면활성제, 예컨대 TWEEN 100 계면활성제, 및 BASF 플루로닉 (pluronic) 계면활성제를 들 수 있다. 일반적 종류는 글리콜, 알콕실레이트 폴리옥시알킬렌 지방 에테르, 예컨대 폴리옥시에틸렌 지방 에테르, 소르비탄 에스테르, 모노 및 디글리세라이드, 폴리옥시에틸렌 소르비톨 에스테르, 중합체 계면활성제, 예컨대 Hypermen 중합체 계면활성제, 나트륨 코코-PG-디모늄 클로라이드 포스페이트 및 코아미도프로필 PG-디모늄 클로라이드 포스페이트, 포스페이트 에스테르, 폴리옥시에틸렌 (POE) 지방산 에스테르, Renex 비이온성 계면활성제 (에틸렌 옥시드 및 불포화 지방산 및 헤테로시클릭 수지산의 반응에 의해 형성된 비이온성 에스테르), 알콜 에톡실레이트, 알콜 알콕실레이트, 에틸렌 옥시드/프로필렌 옥시드 블록 공중합체, 소르비탄 에스테르의 폴리옥시에틸렌 유도체 또는 이의 조합물이다. 일반적으로, 에어로겔과 친화적인 임의의 습윤제가 사용될 수 있다. 습윤제 또는 코팅제 또는 처리제 또는 계면활성제는 또한 반응물 (예를 들어, NH₂ 또는 COOH 또는 CNO 함유) 또는 중합성 (예를 들어, C=C 결합 함유)일 수 있거나 또는 중합 반응을 개시할 수 있다.

[0147] 에어로겔 상의 코팅은 2 이상의 코팅층 또는 캡슐화일 수 있다. 예를 들어, 2 이상의 코팅이 존재하는 경우, 코팅은 서로 동일하거나 상이할 수 있다. 예로서, 수계 코팅이 에어로겔 상에 도포된 후 유기계 또는 오일계 코팅이 이어서 앞서 코팅된 에어로겔에 도포되어 2중 코팅 또는 다중 코팅된 에어로겔을 형성할 수 있다. 다중 코팅된 에어로겔이 이로운데, 왜냐하면 각 코팅이 소정의 목적을 수행할 수 있기 때문이다. 예를 들어, 하나의 코팅은 기공을 차단하거나 연결하는 수단으로서 기능하여 코팅된 에어로겔을 생성할 수 있다. 제 2 코팅이 상

기 코팅 상에 도포되어, 예컨대 기계적 강도에 있어서, 코팅된 에어로겔을 강화시킬 수 있다. 제 2 코팅 또는 잇따른 코팅은, 이것이 먼저 도포된 경우, 기공 사이를 연결하여 코팅된 에어로겔을 생성하지 못할 수 있는데, 왜냐하면 이는 에어로겔의 내부 기공 부피로 유입되는 화학적 특성을 가져서 이에 따라 제 1 코팅으로서 유용하지 않을 것이기 때문이다. 그러나, 에어로겔의 기공 사이를 연결하거나 이를 차단하는 수단으로서 기능할 수 있는 제 1 코팅이 도포된 경우, 잇따른 코팅이, 제 1 코팅에 해롭지 않는 한, 상부에 도포되어 전체 코팅된 에어로겔에 가치를 더할 수 있다. 하나의 상기 예는 수계 에폭시를 이용하여 제 1 코팅을 형성한 후 오일계 에폭시를 앞서 코팅된 에어로겔에 도포하는 것이고, 이는 전체 코팅된 에어로겔에 기계적 강도를 더하는 기능을 할 것이다. 제 2 코팅은 또한 코팅된 에어로겔과 복합체 및/또는 매트릭스 물질과의 상호 작용을 용이하게 하거나 개선하도록 선택될 수 있다.

[0148] 서술한 바와 같이, 본 발명의 하나 이상의 실시양태에서, 에어로겔은 1종 이상의 처리제로 처리되어 처리된 에어로겔을 형성할 수 있다. 처리제는, 예를 들어, 1종 이상의 습윤제 및/또는 1종 이상의 계면활성제일 수 있다. 상기 기술한 바와 같이, 처리된 에어로겔은, 코팅된 에어로겔과는 달리 처리 이후 실질적으로 다공성으로 유지된다. 따라서, 처리된 에어로겔은 기공을 차단함에 의해서가 아니라 수가소성 (hydroplastic) 특성에 의해 중합체 매트릭스로부터 에어로겔의 기공으로의 중합체의 침입 또는 배출을 방지한다. 처리제는 에어로겔의 중합체, 예컨대 수계 중합체로의 분포 또는 분산을 보조한다. 적절한 처리제의 비제한적인 예로서 상기 기술한 습윤제 및 계면활성제를 들 수 있다. 처리된 에어로겔을 형성하기 위해 사용된 처리제는 에어로겔과의 화학적 부착, 흡수, 수소 결합 등에 의해 에어로겔의 표면 상에 존재할 수 있다. 계면활성제 및/또는 습윤제는 충분한 양으로 도포되고 경화되는 경우, 바람직하게는 느리게, 기공 사이의 연결을 유지하기 위한 코팅으로서 기능할 수 있다. 대안으로, 계면활성제 및/또는 습윤제는 에어로겔의 표면 상에 도포되어, 처리제의 양이 더 적고/거나 처리제의 경화가 빠른 것에 기초하여, 처리된 에어로겔을 형성하고, 이에 따라 기공 사이의 연결에 영향을 미치지 않으며, 이에 따라 에어로겔이 다공성으로 유지되는 것을 가능하게 할 수 있다. 일부 실시양태에서, 코팅제 및/또는 처리제는 에어로겔 표면과 반응성이거나 또는 에어로겔 표면과 미반응성일 수 있다. 본 발명에 있어서, 처리제 및/또는 코팅제는 복합체의 또다른 성분과 중합성 및/또는 반응성일 수 있다.

[0149] 서술한 바와 같이, 본 발명의 하나 이상의 실시양태에서, 에어로겔이 먼저 처리되어 처리된 에어로겔을 형성한 후 코팅되어 코팅되고, 처리된 에어로겔을 형성할 수 있다. 예를 들어, 음이온성 계면활성제로 처리된 에어로겔 입자는 이어서 양전하의 중합체 (폴리에틸렌이민, PEI)로 코팅될 수 있다. 본 발명의 하나 이상의 실시양태는 처리된 에어로겔 자체, 뿐만 아니라 코팅된 에어로겔 자체에 관한 것이다.

[0150] 처리제, 예컨대 에어로겔 입자 주위에 수성 외피를 형성하는 계면활성제 (이는 반응성이거나 아닐 수 있음)가 사용될 수 있다. 예를 들어, 수성 외피는 용해된 반응물 "헥산 디아민"을 갖는다. 상기 입자를 헥산 중 세바코일 클로라이드의 유기 용액과 접촉시키는 것은 물-헥산 계면에서 나일론 6,10의 즉각적 형성을 야기한다. 반응은 반응물, 즉 헥산 디아민 농도에 의해 제한된다. 상기 나일론 필름은 에폭시 침입에 대한 불침투성 코팅을 형성한다.

[0151] 또한, 처리제, 예컨대 에어로겔을 습윤시키는 계면활성제가 사용되어 수성상 중 존재하는 단량체의 사슬 중합 반응에 대한 개시제로서 작용할 수 있다. 단량체의 화학적 구조는 이의 올리고머 및/또는 중합체 형태를 표면 활성으로 만들어, 이에 따라 소수성 에어로겔 입자 상에 코팅을 형성할 수 있다.

[0152] 일반적으로, 에어로겔 입자, 예컨대 소수성 에어로겔은 큰 표면적, 예컨대, 예를 들어, 약 300 m²/g 내지 1,000 m²/g, 예컨대 약 700 m²/g을 포함할 수 있으나 이에 국한되는 것은 아니다. 따라서, 에어로겔의 완전한 습윤을 가능하게 하는 계면활성제 또는 분산제의 양은 많을 수 있다. 일반적으로, 완전한 습윤은 충분한 양의 습윤제가 첨가되어 물이 에어로겔 입자의 내부로 침투하여 이것이 수성 매질에 잠기는 경우 일어나는 것으로 생각된다. 전형적으로, 약 1 중량부의 에어로겔에 대한 약 0.6 내지 0.8 중량부의 습윤제의 첨가는 소수성 에어로겔 입자의 완전한 습윤을 야기할 수 있다. 그러나, 수성 슬러리가 실질적으로 건조되는 경우, 완전히 습윤된 입자는 입자 벌크 밀도에서의 큰 증가를 나타낼 수 있다. 그 결과, 완전히 습윤된 에어로겔 입자로 만들어진 복합체 물질의 열 전도도는 더 높은 열 전도도를 갖는 경향이 있다.

[0153] 하나 이상의 실시양태에서, 소수성 에어로겔 입자의 소수성 및 낮은 밀도를 만족스럽게 유지하기 위하여, 소수성 에어로겔 입자의 외부 표면 층만을 습윤시키는 양의 습윤제를 사용하는 것이 바람직하다. 따라서, 에어로겔 입자의 외부 표면에 흡착되기에 충분한 양의 습윤제가 제공될 수 있다. 에어로겔 입자의 외부 표면층만이 습윤되는 경우, 건조시 에어로겔 입자의 벌크 밀도는 무시할만하게 증가할 것이다. 그 결과, 소수성 에어로겔 입자의 소수성은 상대적으로 영향을 받지 않고 복합체 물질은 낮은 열 전도도를 갖는 경향이 있다. 따라서, 하나

이상의 실시양태에서, 바람직하게는 약 1 중량부의 에어로겔에 대하여 약 0.6 중량부 이하의 습윤제가 사용된다. 예를 들어, 0.01 중량부 내지 약 0.5 중량부의 습윤제가 약 1 중량부의 에어로겔에 사용될 수 있다. 습윤제는 에어로겔에 미리 도포될 수 있다. 습윤제는 에어로겔에 공유 결합될 수 있다.

[0154] 에어로겔 입자의 외부 표면 층만의 습윤을 야기하기 위한 습윤제의 양은 소수성 에어로겔 입자의 크기에 의존할 수 있다. 일반적으로, 더 작은 크기의 입자는 더 많은 습윤제를 요구한다. 바람직하게는, 하나 이상의 실시양태에서, 습윤제는 건조 이후 소수성 에어로겔의 소수성 및 낮은 밀도의 실질적 회복을 가능하게 하기에 충분한 양으로 존재한다. 더 바람직하게는, 습윤제는 최종 복합체 물질이 약 200 mW/m² K 미만의 열 전도도를 가지고, 가장 바람직하게는, 약 20 내지 약 150 mW/m² K, 예컨대 약 40 내지 약 100 mW/m² K의 열 전도도를 가지기에 충분한 양으로 존재한다.

[0155] 또다른 예로서, 중합체 매트릭스 또는 연속상이 유기계 중합체 또는 오일계 중합체인 경우, 에어로겔은 수계 중합체 코팅인 코팅을 가질 수 있다. 코팅은 용매 (예를 들어, 수성 또는 비수성)에 용해, 유화, 또는 분산될 수 있고 에어로겔을 습윤시켜 코팅을 형성하기 위해 사용될 수 있다. 하나 이상의 실시양태에서, 중합체 매트릭스로부터의 상기 상이한 코팅은 유기계 중합체가 에어로겔의 기공으로 침투되는 것을 방지한다. 수계 중합체 코팅의 예는 부분적으로 상기에 기술되어 있다. 바람직한 수계 코팅의 비제한적인 예로서, 폴리비닐 아세테이트, 에폭시, 아크릴레이트, 및 폴리우레탄을 들 수 있다. 대안으로서, 에어로겔은, 1종 이상의 화학 물질(들) 또는 반응물을 물에 용해 또는 분산시킨 후 에어로겔을 상기 용액, 에멀전, 또는 분산액으로 습윤시킨 후, 제 1 반응물과 반응하는 제 2 반응물을 함유하는 무극성 용매에 에어로겔을 넣어 에어로겔의 표면 상에 화학적 코팅을 형성함으로써 코팅될 수 있다.

[0156] 에어로겔을 코팅하는 또다른 방법은 에어로겔을 에어로겔의 입자 크기보다 실질적으로 더 미세한 초 미세 분말로 코팅함에 의한 것이다. 상기 미세 분말은, 그 후, 본질적으로, 에어로겔의 표면을 코팅할 것이다. 그 후, 분말 코팅된 에어로겔은 이어서 가열 (또는 용해) 또는 처리되어 에어로겔 상의 분말 코팅을 용융 (또는 분포)시켜 에어로겔의 기공을 차단하는 균일하거나 또는 실질적으로 균일한 코팅을 형성할 수 있다. 미세 분말은 대안으로 에어로겔을 소결시켜 기공 (예컨대, 상부 기공 영역)을 밀폐시키는 것을 보조하거나 이에 기여할 수 있다. 에어로겔의 표면은 대안으로 에어로겔의 기공을 밀폐하는 방식으로 플라즈마에 의해 또는 기타 에너지 적용에 의해 처리될 수 있다. 따라서, 하나 이상의 실시양태에서, 에어로겔은 그 자체의 틀에 의해 이의 기공을 밀폐하고 있다. 미세 분말은 중합체, 왁스, 무기 물질, 예컨대 유리 등일 수 있다. 특정 예로서 파라핀 왁스, 유기 중합체, 예컨대 에폭시 및 열가소성 물질을 들 수 있다. 일반적으로, 에어로겔 상에 도포되는 미세 분말은 약 100 nm 내지 약 0.5 mm 또는 10 nm 내지 0.3 mm 또는 1 μm 내지 0.3 mm의 입자 크기를 갖는다. 에어로겔은 가볍게 습윤되어 에어로겔의 표면에 대한 미세 분말의 접착성을 개선할 수 있다. 에어로겔 상에 코팅된 미세 분말은 에어로겔보다 더 낮은 용점을 가질 수 있다.

[0157] 코팅이 에어로겔 입자에 도포될 수 있는 또다른 방식은 특정 유형의 밀, 예컨대 분립 밀을 사용함에 의한 것이다.

[0158] 각종 성분, 즉 에어로겔 입자 및 코팅 물질이 분립 밀로 공급될 수 있다. 오로지 20 μm 미만의 에어로겔 입자만이 밀을 나가는 것을 피하도록 파라미터가 선택될 수 있다. 에어로겔 및 코팅 물질 간의 접촉이 확립되자마자 코팅 물질이 에어로겔 입자에 공급될 수 있다.

[0159] 본 발명의 복합체의 형성에 있어서, 통상의 수단이 이용될 수 있다. 예를 들어, 1종 이상의 중합체 (세라믹 및/또는 유리) 및 1종의 충전제로부터 복합체를 형성하는, 당업자에게 공지된 임의의 수단이 본 발명의 목적상 이용될 수 있다. 더 구체적인 예로서, 비경화되거나 비강화된 상태로 존재하는 경우 (예를 들어, 중합체가 액체인 경우) 복합체를 형성하는 1종 이상의 중합체가 코팅된 에어로겔과 함께 도입되고 혼합되거나 교반되어 코팅된 에어로겔을 중합체의 연속상 중 분산시킬 수 있다 (예를 들어, 균일하게). 그 후, 혼합물은 통상의 수단, 비제한적인 예로서, 가열, UV 경화 등에 의해 경화되거나 강화될 수 있다. 복합체는 몰드에 부어지고, 압출 등이 실시될 수 있다. 본질적으로, 중합체의 형성 과정에 이용되는 임의의 수단이 본 발명에 이용될 수 있다. 복합체는 복합체 또는 선택적 폼 조성물 중 전형적으로 발견되는 기타 통상의 요소 또는 성분을 함유할 수 있다. 예를 들어, 복합체는 통상의 충전제, 예컨대 카본 블랙, 실리카 등을 함유할 수 있다. 본 발명의 복합체 (또는 복합체를 포함하는 1종 이상의 개별 요소)는 기타 성분, 예컨대 착색제, 경화제, UV 보호제, 가소제, 강인제 (toughening agent), 충전제, 보강제, 중합체 개질제, 안정제, 및/또는 유백제를 포함할 수 있다. 상기 각종 통상의 성분은 당업자에게 공지된 통상의 양으로 사용될 수 있다. 복합체의 형성시, 코팅된 에어로겔은 중합체가 액체 상태이거나 또는 코팅된 에어로겔과 중합체와의 혼합을 가능하게 하는 상태인 경우 도입될 수 있

다. 코팅된 에어로겔의 도입은 예비 성형되고 단지 용융되거나 액체 상태인 중합체에 의해 발생할 수 있거나 또는 코팅된 에어로겔은 연속상 또는 매트릭스를 이루는 1종 이상의 중합체를 형성하는 중합 반응으로 도입될 수 있다. 다시 말해, 코팅된 에어로겔은 중합체의 원위치 제조 동안 도입될 수 있다. 예비 경화되거나 후 경화된 복합체가 임의의 형태 또는 크기로 형성될 수 있거나 또는 이는 목적 용도에 따라 임의의 입자 크기 또는 분말로 분해될 수 있다.

[0160] 복합체를 형성하는 성분은, 강성이든지 또는 가요성이든지, 에폭시, 폴리에스테르, 우레탄, 또는 기타 중합 물질로부터 압출, 예비 주조, 분무 또는 형성되고, 코팅된 에어로겔로 채워질 수 있다. 당업자는 물론 선택적 성분의 정확한 특성은 용도, 예를 들어, 절연 파이프라인의 작동 특징, 예컨대 깊이 및 주위 물 온도에 따라 선택될 것임을 이해할 것이다.

[0161] 본 발명의 복합체 (예를 들어, 선택적 폼)는 복합체가 각종 용도에 사용되는 것을 가능하게 하는 임의의 형상을 가질 수 있다. 또한, 예비 경화되거나 후 경화된 복합체는 임의의 형태 또는 편리한 길이 (예를 들어, 1 인치 미만 내지 수 피트 이상)로 형성될 수 있다. 복합체는 변형가능하고/거나 압축가능할 수 있다. 전형적인 형태는 공동 배관, 슬리브관, 또는 블록 등이다.

[0162] 본 발명의 선택적 폼 또는 복합체 조성물 및/또는 코팅된 에어로겔 및/또는 처리된 에어로겔은 화학 물질, 생물 물질, 기능 식품, 성장 인자, 아미노산, 생물 활성 물질 및 약학적 활성 및 불활성 물질에 대한 담체로서 사용될 수 있고, 약학, 위생, 수의학, 농업 및 의료 용도를 갖는다. 따라서, 본 발명은 또한 약학적 및 화학적 선택적 폼 조성물에 관한 것이다.

[0163] 또한, 코팅된 박막 에어로겔은 마이크로전자 회로에서 저 유전율 절연체로서 사용될 수 있다. 따라서, 본 발명은 또한 마이크로전자 구조물에 관한 것이다.

[0164] 또한, 코팅은 박막일 수 있고, 여기서 박막은 100 nm 보다 얇고, 바람직하게는 50 nm 미만, 예컨대 10 nm 미만, 예를 들어, 1 nm 내지 9 nm일 수 있다. 이로써, 박막은 연속적 또는 불연속적일 수 있고 임의로 적어도 부분적으로 입자에 함침될 수 있다. 함침된 박막은 에어로겔의 내부 구조에 함치될 수 있다. 필름은 기상 증착 기술 (예컨대, 화학적 기상 증착, 물리적 기상 증착 또는 원자층 증착) 또는 액상 증착 기술 (예컨대, 전기화학적 증착, 무전해 증착, 흡착, 또는 침전) 또는 고상 기술의 이용으로 증착될 수 있다. 박막은 상기 개시한 유형의 중합 물질, 무기 물질 (예컨대, 유리 또는 세라믹), 생물 활성 물질 (예컨대, 단백질) 또는 금속 (예컨대, Ag, Au, Pt, Ru, Ta, Rh, Ir, Fe, Ni, Co, Mn, Nb, Pd, Pu, U) 또는 반도체 (예컨대, Si, Ge, TiO₂, ZnO, GaAs, GaN, InP)일 수 있다. 박막은 상기 종류의 물질 중에서 선택된 복수 개의 박막으로 이루어질 수 있다. 이로써, 박막 코팅된 에어로겔 입자는 표면 반응성을 포함하는 분야, 예컨대 촉매 작용, 센서, 및/또는 전자/광전자 장치에서 용도를 가질 수 있다.

[0165] 또한, 본 발명은 통상의 선택적 폼이 사용되는 동일한 용도에 사용될 수 있다. 이의 비제한적인 예로서, 선택적 폼에 의해 절연된 파이프, 부력 용도 등을 들 수 있다. 추가로, 물질 및 용도는, 모든 전문을 본원에서 참고로 인용하는 미국 특허 제 6,848,863호; 6,827,110호; 6,800,668호; 6,805,253호; 6,758,710호; 6,706,776호; 6,476,087호; 6,284,809호; 및 5,888,642호에 기술되어 있다.

[0166] 또한, 본 발명의 에어로겔은 에어로겔 함유 블랭킷에 사용될 수 있다. 블랭킷은 에어로겔, 섬유, 및 기타 성분을 포함할 수 있다. 미국 특허 출원 제 11/013,306호에 기술된 바와 같은 에어로겔 함유 블랭킷의 세부 사항은 본 발명의 에어로겔과 함께 본 발명에 이용될 수 있다. 상기 출원은 그 전문이 본원에서 참고로 인용된다.

[0167] 선택적 폼 용도, 예컨대 해저 파이프라인에 대한 습식 절연체에서의 유리 미세구에 대한 대체물로서의, 에어로겔, 예컨대 본 발명의 에어로겔 입자의 사용은 열 전도도에서 25% ~ 40%의 개선을 제공할 수 있다. 이는 에어로겔 표면이 중합체 매트릭스에 불침투성인 경우 본질적으로 가능하다. 예를 들어, 본 발명에서, 60 내지 약 110 mW/m-K 범위의 열 전도도가 달성될 수 있다. 본 발명에서, 에어로겔 자체는 유리 미세구보다 실질적으로 더 낮은 열 전도도, 예컨대 60 mW/m-K 미만, 및 더 바람직하게는 50 mW/m-K 미만, 및 더욱 더 바람직하게는 약 5 mW/m-K 내지 약 30 mW/m-K의 열 전도도를 가질 수 있다.

[0168] 본 발명에 있어서, 전체 복합체의 열 전도도는 하기와 같을 수 있다:

$$[0169] \lambda_{\text{복합체}} = \Phi \lambda_{\text{에어로겔}} + (1-\Phi) \lambda_{\text{중합체}}$$

$$[0170] \Phi = 0.01 - 0.99 \Phi = \text{에어로겔의 부피 분율}$$

- [0171] $\lambda_{\text{에어로겔}} = 4 - 100 \text{ mW/m-K}$
- [0172] $\lambda_{\text{중합체}} = 20 - 1000 \text{ mW/m-K}$, 여기서 중합체는 가스 포켓을 가질 수 있음
- [0173] 본 발명의 선택틱 폼은 가수분해적으로 안정하고 높은 압축 E-계수를 가질 수 있다. 높은 압축 E-계수는 300 psi 초과일 수 있다. 상기 가수분해적으로 안정한 선택틱 폼은 분해 없이 0 내지 40°C의 온도의 물에 20 년 이하 동안 노출될 수 있다.
- [0174] 또한, 임의의 성분으로서, 1종 이상의 결합체가 복합체 중 존재할 수 있고, 복합체가 비경화된 복합체 혼합물인 경우 첨가될 수 있다.
- [0175] 본 발명에 유용한 적절한 결합체의 예로서 고 분자량 다당류, 잔탄 검, d-알파-토코페롤 폴리에틸렌 글리콜 1000 석시네이트, 전분 NF, 포비돈, 코폴리비돈 NF, 폴리비닐 알콜, 글리세릴 베헤네이트, 잔탄 검, 폴리에틸렌 글리콜, 폴리에틸렌 옥사이드, 셀룰로오스 결합체, 히드록시프로필 메틸셀룰로오스 USP 및 히드록시에틸 셀룰로오스 NF를 들 수 있고, 특히 바람직한 것은 히드록시프로필 메틸셀룰로오스 USP 및 히드록시에틸 셀룰로오스 NF이다.
- [0176] 본 발명의 복합체, 예를 들어, 선택틱 폼은 약 0.05 내지 약 1.0 g/cm³의 밀도를 가질 수 있다. 더 바람직하게는, 밀도는 약 0.3 내지 약 0.8 g/cm³이다.
- [0177] 본 발명은 본 발명을 예시하기 위한 목적인 하기 실시예에 의해 더 명백해질 것이다.
- [0178] [실시예]
- [0179] **실시예 1:**
- [0180] 10 μm 크기의 나노겔® 입자 (150 g)를 150 g의 PVA 및 20.5 g의 Barlox 12i (100% 기준)를 함유하는 1.5 l의 용액에 첨가함으로써 나노겔® 에어로겔 입자/PVA 슬러리를 제조하였다. 진탕 및 교반 이후, 크림 같은 농도를 갖는 슬러리가 형성되었다. 슬러리를 100°C에서 실험실 건조하여 PVA가 풍부한 상부 덩어리층, 물질의 벌크를 나타내는 분말 층 및 PVA가 풍부한 하부 층의 층상 구조를 제공하였다. 상부 층의 덩어리는 이소프로판올에 부유하였다. 열중량 측정 연구는 샘플이 42 중량%의 나노겔® 입자를 함유함을 나타내었다 (즉, PVA:나노겔의 중량비가 약 1.4:1이었다). 덩어리를 40 및 50 v%의 로딩량으로 에폭시에 혼합하는 것은 (덩어리가 0.27 g/cc의 밀도를 가짐을 가정함) 기공이 없는 것으로 보이는 복합체를 제공하였다. 40 v%의 덩어리를 함유하는 에폭시를 이소프로판올에 부유하였다. 50 v%의 덩어리를 함유하는 에폭시는 93 mW/m² K의 열 전도도를 갖는 것으로 관측되었고, 상기 값은 매우 유리하게 통상의 선택틱 폼의 값과 유사한 것이다.
- [0181] **실시예 2:**
- [0182] **나노겔 수계 에폭시 복합체:** 수계 에폭시 에멀전/분산액을 수성 경화제와 함께 사용하였다. 계면활성제를 이용하여 에폭시 에멀전/분산액을 안정화하였다. 나노겔 입자의 소수성은 용액의 침입에 저항성이었다. 수계 에폭시 (WBE), 수성 경화제 및 나노겔 입자의 단일 용기 (one pot) 혼합물을 가볍게 교반하였다. WBE 중 과량의 계면활성제는 나노겔 입자의 습윤을 도와, 친밀한 나노겔-에폭시 복합체가 달성되었다. 각각 크기가 3.0, 1.0, 및 0.08 mm인 나노겔 등급 TLD302, TLD101, 0.8N이 이용되었다. 복합체를 밤새 건조시킨 후 70°C에서 12 시간 동안 경화시켜 유리한 열 성능을 나타내는 가벼운 중량의 복합체를 제공하였다.
- [0183] 통상의 조성물을 사용하였다: (i) 샘플 SF_08N: 16 g의 EPI REZ 3515, 4 g의 EPI KURE 8535, 3 g의 나노겔 08N (ii) 샘플 SF_101: 16 g의 EPI REZ 3515, 4 g의 EPI KURE 8535, 6 g의 물, 4 g의 나노겔 TLD 101. EPI REZ 및 EPI KURE 화학 물질을 레졸루션 퍼포먼스 프로덕츠 (Resolution Performance Products)로부터 입수하였다. SEM 이미지를 취하였고 이는 나노겔 입자 및 에폭시의 친밀한 혼합물이 기공 침입 없이 형성되었음을 명백히 보여주었다. 코팅된 입자가 에폭시와 함께 관측되는 복합체의 영역의 확대된 이미지는 4.5 μm 의 코팅 두께를 가졌고, 도 1을 참고하라. 제조된 상이한 샘플의 측정된 열 전도도는 나노겔의 부피 로딩량에 따라 60 ~ 80 mW/m-K 범위였다 (표 1 참조). 이론적 Maxwell 및 Parallel 혼합 모델과의 비교를 수행하였다. 제형물에 사용된 순수한 에폭시의 열 전도도는 공지되어 있지 않은 한편, 문헌의 값은 190 ~ 250 mW/m-K 범위이다. 샘플은 파손 (failing) 이전에 10%의 변형률로 1.5 MPa의 압축 응력을 견딜 수 있었다.

표 1

[0184]

상이한 나노겔 로딩량에서의 나노겔-에폭시 복합체의 열 성능					
샘플 ID	나노겔 부피%	에폭시 (k)*	나노겔 (k)	Maxwell 모델 (k)	측정치 (k)
SF_08N_1	68	250	14	71.5	73
SF_101_4_1	74	250	14	60.0	63
SF_101_2_1	58	250	14	92.0	83
샘플 ID	나노겔 부피%	에폭시 (k)*	나노겔 (k)	Parallel모델 (k)	측정치 (k)
SF_08N_1	68	190	14	70.3	73
SF_101_4_1	74	190	14	59.7	63
SF_101_2_1	58	190	14	88.0	83

[0185]

실시예 3:

[0186]

수계 에폭시 코팅된 나노겔 입자: 상기 실시예 2에서와 같이 경화제를 수성 믹스에 혼합시키는 대신, 표면 활성 경화제를 사용하여 나노겔 입자의 표면을 도포하여 나노겔 표면 상에 형성되는 에폭시의 얇은 코팅을 제공하였다.

[0187]

실시예 4:

[0188]

반응성 계면활성제를 이용한 입자의 에폭시 코팅: 에어로겔 비드의 표면 상에 수지의 층을 직접적으로 구축하는 신규한 수단은 1차 및 2차 아민을 갖는 계면활성제 중 입자를 먼저 코팅하는 것이다. 그 후, 상기 아민은 에폭시에 대한 반응성 부위, 또는 경화제로서 작용한다. 반응성-계면활성제 에폭시 방법을 입증하는 상기 접근법은 도 2에 도식적으로 도시되어 있다.

[0189]

1차 및 2차 아민기를 갖는 계면활성제는 시판되며, 도 3에 도시되어 있다. 아민기 상의 수소는 에폭시 수지에 대한 결합에 이용가능하다. 하부의 2개의 분자는 3-D 중합체 구조를 가능하게 한다.

[0190]

잠재적 수지 결합에 대한 3개 이상의 부위를 갖는 계면활성제는 더 많은 가교 및 3차원 구조를 유도할 수 있다. 이는 2차원 구조보다 입자를 덮는 역할을 더 잘 할 수 있다. 추가로, 3 가지 주요 종류의 수지를 시도하였다: 통상의 (유기계) 수지 및 고 분자량 뿐만 아니라 저 분자량의 수 분산 수지. 다수의 실험실 방법을 이용하여 효과적인 코팅 기술을 조사하였다. 예를 들어, 입자의 경화제/계면활성제의 층 및 수지에 의한 잇따른 코팅을 시험하였다. 사용된 계면활성제의 양은 또다른 실험 변수였고, 이는 수상이 입자에 얼마나 깊이 침입할 수 있고, 이어서 에폭시 코팅이 얼마나 두껍게 형성될 수 있으며 이 과정에서 얼마나 많은 입자 부피가 희생될 수 있는지를 측정한다. 아민기 상의 수소가 에폭시 수지에 대한 결합에 이용가능하다. 도 2에 도시된 하부의 2개의 분자는 3-D 중합체 구조를 가능하게 할 수 있다.

[0191]

상기 실험 세트에 사용된 3종의 계면활성제는 Duomeen C, Duomeen T, 및 Triameen T이다. 모두 악조 노벨, 인 코포레이티드 (Akzo Nobel, Inc.)로부터 이용가능한 계면활성제의 상표명이고 이는 표 2에 기재되어 있다. 본원에 사용된 4번째 계면활성제는 옥타데실아민이고, 이는 단지 C18 사슬을 포함한다.

표 2

[0192]

상기 실험실 작업에 사용된 계면활성제의 특성			
계면활성제	용점 °C	밀도 g/cc	HLB, Davies 스케일 0-40
옥타데실아민	60-50	0.86	<8.2
Duomeen®C (N-코코알킬-1,3-디아미노 프로판) RNH(CH ₂) ₃ NH ₂	15 (담점: 23)	0.836	17.5
Duomeen®T (N-탈로우알킬 1-1,3-디아미노프로판) RNH(CH ₂) ₃ NH ₂	40	0.84	15.6
Triameen®T (N-탈로우알킬 디프로필렌 트리아민) RNH(CH ₂) ₃ NH(CH ₂) ₃ NH ₂	40	0.845	32

- [0193] 에어로겔 입자를 에폭시 코팅으로 코팅하는 일반적 절차는 하기와 같다.
- [0194] 열거된 절차는 에폭시 침입을 방지할 코팅된 1 mm의 에어로겔 비드를 제조하기 위한 전형적인 절차이다. 에어로겔 입자를 계면활성제로 코팅한다. Duomeen C를 1% w/w의 용액 중 70°C에서 격렬하게 진탕시킴으로써 물 중 수화시켰다. 그 후, 에어로겔 입자를 상기 수화된 계면활성제 용액에 도입하고, 입자가 완전히 습윤될 때까지 생성되는 혼합물을 다시 진탕시켰다. 수화된 계면활성제 용액 대 1 mm의 에어로겔 비드의 전형적인 비는 15.7 g/g이었다. 다음 단계 동안 입자를 표면으로부터 걷어내었다. 코팅된 비드를 에폭시 수지에 첨가하였다. 대략 5 ml의 Epi-Rez 3522-W-60, 수 분산 에폭시 수지를 적절한 용기, 예컨대 캡을 갖는 15 ml의 시험관 내에 위치시키고 70°C까지 예열하였다. 앞선 단계에서 제조된 소량, 전형적으로 0.31 g의 습윤된 에어로겔을 수지를 함유하는 시험관의 상부에 도입하였다. 관을 거꾸로 하여 에어로겔을 습윤시킨 후, 보텍스 혼합기 내에서 4 초 동안 2 회 교대로 바로 및 거꾸로 하여 혼합하였다. 그 후, 관을 2차 용기 내에 넣고 70°C의 캐비닛 중 밤새 유지시켰다.
- [0195] 세정 및 분석. 관을 70°C의 캐비닛으로부터 제거하였다. 비드를 현탁액의 표면으로부터 떼내어 스크류-탑 (screw-top) 바이알 내에 위치시켰다. 대략 20 ml의 물을 첨가하고 바이알을 진탕시켜 수지를 비드로부터 씻어 내었다. 전 용액을 필터 상에 붓고 배출되게 하였다. 그 후, 비드를 물로 완전히 세정하였다. 비드가 물 및 경질 파라핀 오일 중 부유하는 능력에 의해 이의 성능을 모니터링하였다.
- [0196] 오일계 에폭시로의 도입. 앞선 단계에서 제조된 습식 코팅된 에어로겔 입자를 오일계 에폭시 수지에 첨가하였다. 사용된 수지는 1.0 g의 Dow DEH 24 경화제를 갖는 12.9 g의 다우 케미컬 (Dow Chemicals)의 DER 331 수지였다. 상기 방법은 파라핀 오일 및 물 상에 성공적으로 부유하고 오일계 에폭시 수지로 도입될 수 있으며 수지의 에어로겔로의 침입 없이 경화될 수 있는 입자의 생성을 야기하였다. 1 mm의 비드에 있어서, 0.1 g/g의 계면활성제:에어로겔의 비는 바람직한 결과를 나타내는 대략 최소의 수준이었다. 이는 상기 1 mm 비드로의 대략 0.034 mm의 계산된 방사상 침투 깊이에 해당한다.
- [0197] **실시예 5:**
- [0198] **에어로겔 입자의 나일론 코팅.** 접근법: 각종 실시양태에 있어서, 중합체 코팅은 2 가지 기준을 충족시킬 수 있다: (1) 중합이 필름 형성 시점까지 진행되거나, 또는 중합체 분자가 너무 커서 입자의 기공으로 흐르거나 분산될 수 없게 되기 이전에 반응은 임의의 액상이 분산 또는 모세관 흐름에 의해 입자로 유입되는 것을 방지하기에 충분히 빠를 필요가 있음, 및 (2) 중합은, 기공을 포함하는 입자의 전 표면을 덮을 수 있는 연속 필름을 야기하여, 입자가 에폭시 수지 내로 포매되어 신택틱 폼을 형성하는 경우 오일 또는 물이 기공으로 유입되는 것을 방지해야 함. 나일론의 중합은 상기 2 가지 기준을 충족시키고, 매우 빠르며 계면 반응이다. 상기 반응의 화학 구조 및 화학양론은 도 4에 도시되어 있다. 알킬 클로라이드 단량체는 유기상, 예를 들어, 시클로hex산에 가용성인 반면, 디아민 단량체는 수상에 가용성이다. 중합은 상 계면에서 발생하여, 나일론의 필름을 형성하고, 이는 중합에 어느 한 쪽 상 중 더 진행되는 것을 방지할 수 있다.
- [0199] 도 5는 나일론 중합 접근법의 계략도를 예시한다. 에어로겔 입자는 반응성 계면활성제 및 물 중 10% w/w의 핵산 디아민으로 코팅되었고, 그 후 유기상에 노출되었다. 계면 반응은 입자 표면에서 발생한다.
- [0200] 상기 기술한 바와 같이, 입자는 이의 극성 말단에 2개 이상의 아민기를 갖는 계면활성제를 함유하는 물에 이를 침지시킴으로써 먼저 습윤되었다. 그러나, 첫번째 결과는 계면활성제 단독이 완전하고 빠른 중합을 위한 충분한 단량체를 제공하지 않음을 보여주었으므로, 추가의 핵산 디아민을 용액에 첨가하였다. 도 5에 도시된 바와 같이, 입자를 물 표면으로부터 떠낸 후, 이를 물 외피로 코팅하였다. 그 후, 물 및 계면활성제로 적셔진 입자를 핵산 중 5% v/v의 세바코일 클로라이드 용액에 침지시켰다. 중합은 물 외피 및 유기 용매의 계면에서 자발적이고 빠르게 발생하여, 에어로겔 입자 주위에 나일론 필름 코팅을 이상적으로 제공하였다.
- [0201] 물 중 5% w/w의 계면활성제 용액을 제조하였다. 샘플이 70°C의 오븐 내에 위치되는 경우 계면활성제가 용해되었다. 저장 용액을 물에 60% w/w 내지 30% w/w로 희석시킴으로써 핵산 디아민 용액을 제조하였다. 계면활성제 및 디아민 용액을 이용하여 입자를 습윤시켰다: 0.6 g의 1 mm의 에어로겔 입자를 1 mm의 입자의 경우 1.2 g의 계면활성제 용액과 또는 60 ~ 80 μm의 입자의 경우 1.6 g의 계면활성제 용액과 혼합하였고, 이는 각각 10% w/w 또는 14% w/w의 계면활성제 대 입자에 해당한다. 상기 현탁액에, 3.3 g의 30% w/w의 디아민 용액 (10% w/w의 최종 농도를 야기함), 및 5.5 g의 물을 첨가하였다. 핵산 중 세바코일 클로라이드 (C1CO(CH₂)₈COCl) 용액을 작은 유리 바이알 내에서 제조하였다. 유리 피펫을 이용하여, 0.4 ml의 세바코일 클로라이드를 5 ml의 핵

산에 희석시켰다. 습윤된 입자를 수상의 표면으로부터 떼내었다. 습윤된 입자를 핵산 상 (phase)에 적가하였다. 뚜껑을 꼭 닫은 후, 거꾸로 하여 내용물을 혼합하였다. Whatman 종이 필터를 통해 고체를 여과하였다. 입자를 핵산으로 세정하였다. 입자를 흡 후드 (fume hood) 중 필터 페이퍼 상에서 건조시켰다.

[0202] 개별 입자 코팅: 1 mm 크기의 개별 입자. 1 mm의 입자를 습윤시키고 세바코일 클로라이드 용액을 앞서 기술한 바와 같이 제조하였다. 입자를 1.18 mm 메쉬 상에 위치시키고 가압 공기를 이용하여 몇몇 입자를 메쉬를 통해 빈 유리 비커 내에 분무하였다. 세바코일 클로라이드 용액을 비커 내에 부었다. 입자가 유리에 들러붙는 경우, 이를 스파툴라 (spatula)에 의해 제거하였다. 입자를 여과하고 상기와 같이 건조하며, 몇몇을 SEM 분석을 위해 제출하였다. 모든 용액 및 습윤된 입자를 상기와 같이 제조하였다.

[0203] 도 6은 개별 입자의 나일론 코팅의 개략도를 예시한다. 일정 비율로 도시되지 않았다. 도 6에 도시된 바와 같이 350 또는 500 μm (이하)의 메쉬 체를 큰 페트리 접시 상으로 약 8의 클램프/스탠드 상에 올려놓았다. 질소 또는 공기압 게이지를 20 psi로 설정하였다. 물을 페트리 접시 내에 1 cm의 수준까지 부었다. 최대 질소 유량을 이용하여 튜브 발생하지 않음을 확인하였다. 물을 버렸다. 후드 새시의 일부를 메쉬 및 페트리 접시 장치 앞에 차폐물로서 위치시켰다. 작동마다 대략 150 ml의 세바코일 클로라이드 용액이 필요하였고, 이를 큰 페트리 접시 내에 부었다. 습윤된 입자의 덩어리를 상기 페트리 접시 중앙의 메쉬 상에 위치시켰다. 새시를 거의 완전히 밀폐하고 질소 스트림을 작동시켜 입자로 향하게 하였다. 입자를 개별적으로 또는 2 ~ 3 개의 입자의 덩어리로 스크린을 통해 통과시켰다. 세바코일 클로라이드 중 입자 형성을 관측하였다. 부유 입자를 표면으로부터 걷어내어 Whatman 필터 상에 위치시키고, 핵산으로 세정하며 앞서 기술한 바와 같이 건조시켰다.

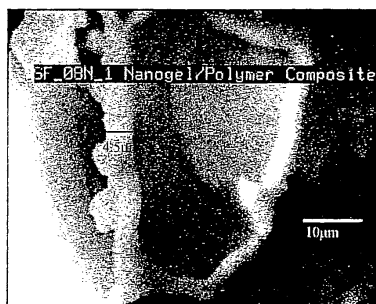
[0204] 나일론 코팅된 입자를 갖는 에폭시 복합체: 복합체에 대하여, 12.9 g의 Dow D.E.R. 331 에폭시 수지를 1.0 g의 DEH 24 경화제와 혼합하고, 2.25 g의 나일론 코팅된 60 내지 80 μm 의 에어로겔 입자를 첨가하고 스파툴라에 의해 가볍게 혼합하였다. 혼합물을 알루미늄 팬 내에 부어 전도도 시험 및 기계적 시험을 위한 썩을 제조하였다. 썩을 실온에서 밤새, 이어서 70°C에서 6 시간 경화시켰다. 나일론 필름은 연속적이며 균일하며 약 5 μm 의 두께로 보인다.

[0205] 출원인은 본 개시 내용에 인용된 모든 참고 문헌의 전문을 명확하게 인용한다. 또한, 양, 농도 또는 기타 값 또는 파라미터가 범위, 바람직한 범위, 또는 바람직한 상한치 및 바람직한 하한치의 목록으로서 기재된 경우, 이는 범위가 별개로 개시되는 지의 여부에 관계 없이, 임의의 상한치 또는 바람직한 값 및 임의의 하한치 또는 바람직한 값의 임의의 쌍으로부터 형성된 모든 범위를 명확히 개시하고 있는 것으로 이해된다. 수치의 범위가 본원에 인용되는 경우, 달리 명시하지 않는 한, 상기 범위는 이의 중점, 및 범위 이내의 모든 정수 및 소부분을 포함하는 것으로 의도된다. 본 발명의 범위는 범위를 한정하는 경우 인용된 특정 값에 국한되지 않는 것으로 의도된다.

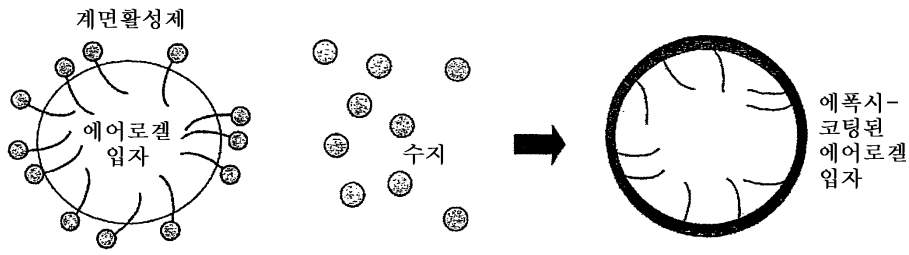
[0206] 본 발명의 기타 실시양태는 본 명세서 및 본원에 개시된 본 발명의 실행의 고려로부터 당업자에게 명백할 것이다. 본 명세서 및 실시예는 오로지 예시적인 것으로 생각되고, 본 발명의 본래 범위 및 의미는 하기 특허청구 범위 및 이의 등가물에 의해 지시되는 것으로 의도된다.

도면

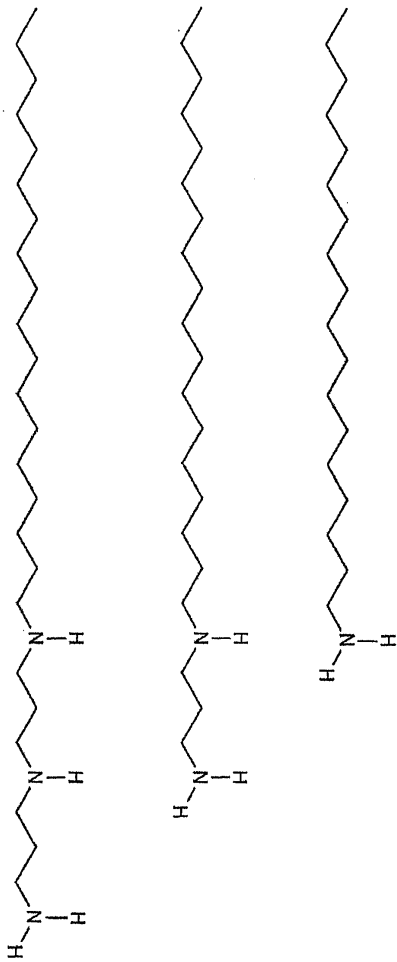
도면1



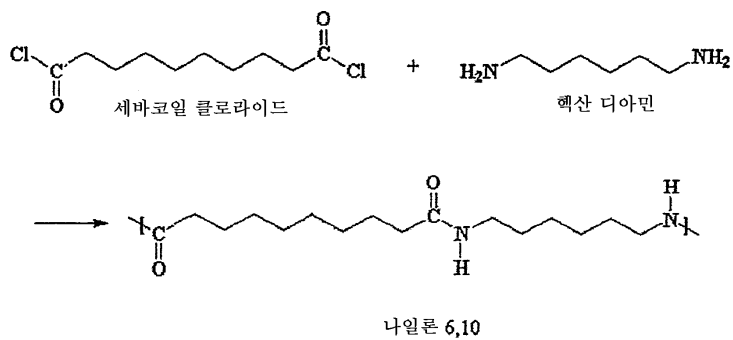
도면2



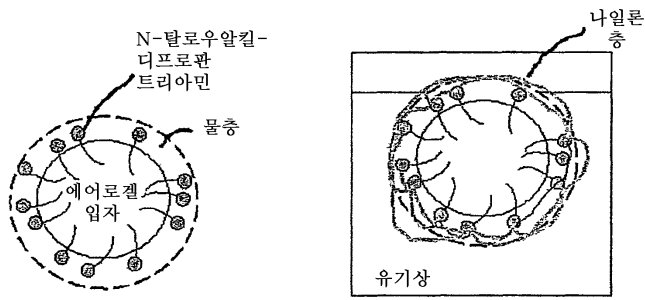
도면3



도면4



도면5



도면6

