



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2021년06월02일  
(11) 등록번호 10-2259655  
(24) 등록일자 2021년05월27일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C09D 175/04 (2006.01) B05D 7/24 (2006.01)  
C08J 9/00 (2006.01) C08K 3/36 (2006.01)  
C08K 7/26 (2006.01) C08L 75/04 (2006.01)  
C09D 5/00 (2006.01) C09D 7/40 (2018.01)  
C09D 7/61 (2018.01)
- (52) CPC특허분류  
C09D 175/04 (2013.01)  
B05D 7/24 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2019-0029222
- (22) 출원일자 2019년03월14일  
심사청구일자 2019년03월14일
- (65) 공개번호 10-2020-0109725
- (43) 공개일자 2020년09월23일
- (56) 선행기술조사문헌  
KR1020130124960 A\*  
KR1020150081035 A\*  
KR1020140135394 A  
KR100666110 B1  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

- (73) 특허권자  
한국과학기술연구원  
서울특별시 성북구 화랑로14길 5 (하월곡동)  
전북대학교산학협력단  
전라북도 전주시 덕진구 백제대로 567 (덕진동1가)
- (72) 발명자  
조재현  
전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92  
양범주  
전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92  
(뒷면에 계속)
- (74) 대리인  
김영철, 김 순 영

전체 청구항 수 : 총 13 항

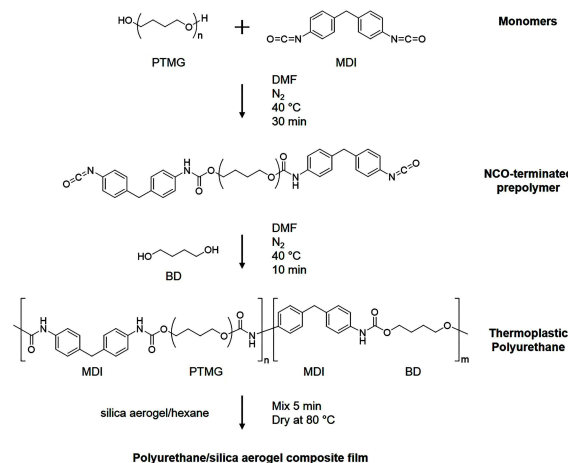
심사관 : 이흥재

(54) 발명의 명칭 코팅형 유무기 단열 복합재료, 이를 포함하는 구조체, 및 제조방법

(57) 요약

본 명세서에서는 폴리우레탄 및 에어로겔을 포함하며, 상기 폴리우레탄은 상기 에어로겔을 서로 접촉시키고, 상기 접촉된 에어로겔은 단열 복합재료에 분산된 것인 단열 복합재료가 제공된다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

*C08G 18/10* (2013.01)  
*C08K 3/36* (2013.01)  
*C08K 7/26* (2013.01)  
*C08L 75/04* (2013.01)  
*C09D 5/00* (2019.08)  
*C09D 7/61* (2018.01)  
*C09D 7/70* (2018.01)

**신동혁**

전라북도 전주시 덕진구 명륜2길 15-5, 808호

(72) 발명자

**김성륜**

전라북도 전주시 완산구 홍산북로 83, 103동 2303호

**장한결**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711077437
부처명	다부처
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	치안현장맞춤형연구개발사업(폴리스랩)(R&D)(과기정통부+경찰청)
연구과제명	초경량 방호용 섬유강화 복합소재 개발
기여율	1/1
과제수행기관명	한국과학기술연구원
연구기간	2018.08.01 ~ 2019.04.30

공지예외적용 : 있음

---

**명세서**

**청구범위**

**청구항 1**

폴리우레탄; 및 에어로겔;을 포함하며,

상기 폴리우레탄은 상기 에어로겔을 서로 점착시키고, 상기 점착된 에어로겔은 코팅형 단열 및 난연 복합재료에 분산된 것이고,

상기 코팅형 단열 및 난연 복합재료는 에어로겔을 코팅형 단열 및 난연 복합재료의 전체 중량에 대하여 5-30 중량%로 포함하는, 코팅형 단열 및 난연 복합재료.

**청구항 2**

제1항에 있어서,

상기 폴리우레탄은 폴리올 화합물, 이소시아네이트 화합물, 및 사슬연장제의 중합체인, 코팅형 단열 및 난연 복합재료.

**청구항 3**

제2항에 있어서,

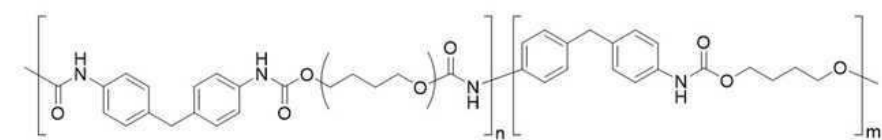
상기 폴리올 화합물의 분자량은 200-1500 g/mol인, 코팅형 단열 및 난연 복합재료.

**청구항 4**

제1항에 있어서,

상기 폴리우레탄은 화학식 1로 표현되는 것인, 코팅형 단열 및 난연 복합재료.

[화학식 1]



여기서 m과 n은 임의의 정수임

**청구항 5**

삭제

**청구항 6**

제1항에 있어서,

상기 에어로겔은 실리카 에어로겔인, 코팅형 단열 및 난연 복합재료.

**청구항 7**

제1항 내지 제4항 및 제6항 중 어느 한 항에 따른 코팅형 단열 및 난연 복합재료; 및 기재;를 포함하며,

상기 코팅형 단열 및 난연 복합재료는 기재 상에 적층된 것인, 단열 복합 구조체.

**청구항 8**

제7항에 있어서,

상기 기재는 유리, 플라스틱, 금속, 목재, 및 콘크리트로 구성된 군에서 선택되는 하나인, 단열 복합 구조체.

**청구항 9**

제7항에 있어서,

상기 코팅형 단열 및 난연 복합재료의 적층된 두께는 100  $\mu\text{m}$  내지 1mm인, 단열 복합 구조체.

**청구항 10**

폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성하는 단계;

예비 중합체에 사슬연장제를 중합하여 폴리우레탄을 제조하는 단계; 및

폴리우레탄과 에어로겔을 혼합하여 코팅형 단열 및 난연 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하며,

상기 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 단계는 에어로겔을 혼합물 전체 중량에 대하여 5-30 중량%로 혼합하는 것인, 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법.

**청구항 11**

제10항에 있어서,

상기 예비 중합체는 말단기를 -NCO로 갖는, 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법.

**청구항 12**

제10항에 있어서,

상기 중합은 40-80  $^{\circ}\text{C}$  온도에서 10-60분 동안 수행되는, 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법.

**청구항 13**

삭제

**청구항 14**

제10항에 있어서,

상기 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법은 제조된 코팅형 단열 및 난연 복합재료를 경화시키는 단계;를 더 포함하는, 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법.

**청구항 15**

제14항에 있어서,

상기 경화 단계는 50-100 $^{\circ}\text{C}$  온도에서 수행되는, 코팅형 단열 및 난연 복합재료 제조 방법.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 명세서에는 코팅형 유기 단열 복합재료가 개시된다.

**배경 기술**

[0002] 일반적으로 졸-겔 공정을 통해 제조되는 에어로겔은 3차원의 다공성(> 90 %) 구조로 형성되어 있어 밀도(0.003-0.1  $\text{g}/\text{cm}^3$ )와 열전도율(0.013 ~ 0.14  $\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$ )이 낮아 단열소재로 많이 활용된다. 특히 실리카로 에어로겔은 가공이 용이하고 경제성이 높아 열 저장 장치, 음향 시스템, 우주부품에 적용 가능성이 매우 높은 소재이다. 또한 에어로겔은 우수한 물리 및 열적 특성으로 오늘날 실제로 캐패시터, 연료저장 장치, 촉매, 단열재, 흡착제 등의 용도로 활용되고 있다.

[0003] 매우 낮은 밀도와 열전도도를 지닌 에어로겔은 동시에 대단히 낮은 기계적 물성을 지니고 있어 이를 극복할 수 있는 내구성 향상 방안이 요구된다. 이를 위해 일부 그룹은 에어로겔 자체의 밀도를 증가시켜 기계적 물성을 보완하고자 하였으나, 이는 외기와 우주와 같은 혹독한 조건에 응용분야에 적용하기에는 충분하지 않다. 에어로겔을 보강하는 다른 방법으로, 에어로겔에 유기 중합체를 결합시키거나 겔과 중합체 사이의 계면을 개질하는 방법이 연구된 바 있다. 또한 전기방사 방식으로 섬유와 에어로겔을 함께 결합시켜 웹 형태로 제조한 경우도 있다. 상기 방식은 효과적인 기계적 물성향상 결과를 보고하였으나, 기존 방식에서 큰 굽힘형태의 운동에서 취성에 의한 파손은 극복할 수 없었다. 또한 플라스틱, 금속, 콘크리트와 같은 이종소재와의 접착력이 좋지 않아 다양한 분야에 적용하는데 한계가 있다.

**선행기술문헌**

**특허문헌**

- [0004] (특허문헌 0001) KR 10-1854673 B1
- (특허문헌 0002) KR 10-1555463 B1
- (특허문헌 0003) KR 10-1317265 B1
- (특허문헌 0004) 10-1296880 B1
- (특허문헌 0005) 10-2018-0033675 A

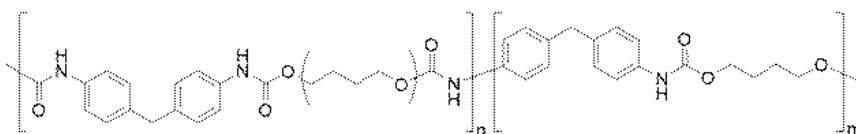
**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

- [0005] 본 발명의 일 측면은 낮은 열전도도에 의한 단열 및 난연 특성 등의 우수한 성능을 가지면서도 기계적 물성이 효과적으로 향상된 단열 복합재료를 제공하는 것을 목적으로 한다.
- [0006] 본 발명의 일 측면은 유무기 단열 복합재료 그 자체로 활용가능한 한편, 유리, 플라스틱, 콘크리트 등 다양한 기재에 용이하게 적용되어 우수한 단열 성능을 나타내는 단열 복합재료를 제공하는 것을 목적으로 한다.
- [0007] 본 발명의 일 측면은 기존의 단열소재에 비해 간단하면서도 효율적인 유무기 복합 소재 합성 제조법을 제안하는 것을 목적으로 한다.

**과제의 해결 수단**

- [0008] 본 발명의 일 구현예에서, 폴리우레탄; 및 에어로겔;을 포함하며, 상기 폴리우레탄은 상기 에어로겔을 서로 접촉시키고, 상기 접촉된 에어로겔은 단열 복합재료에 분산된 것인, 단열 복합재료가 제공된다.
- [0009] 예시적인 구현예에서, 상기 폴리우레탄은 폴리올 화합물, 이소시아네이트 화합물, 및 사슬연장제의 중합체일 수 있다.
- [0010] 예시적인 구현예에서, 상기 폴리올 화합물의 분자량은 200-1500 g/mol일 수 있다.
- [0011] 예시적인 구현예에서, 상기 폴리우레탄은 화학식 1로 표현될 수 있으며, 여기서 m과 n은 임의의 정수일 수 있다.
- [0012] [화학식 1]



- [0013]
- [0014] 예시적인 구현예에서, 상기 단열 복합재료는 에어로겔을 단열 복합재료의 전체 중량에 대하여 0.01-30 중량%로 포함할 수 있다.

- [0015] 예시적인 구현예에서, 상기 에어로겔은 실리카 에어로겔일 수 있다.
- [0016] 본 발명의 다른 구현예에서, 본 발명의 구현예에 따른 단일 복합재료; 및 기재;를 포함하며, 상기 단일 복합재료는 기재 상에 적층된 것인, 단일 복합 구조체를 제공한다.
- [0017] 예시적인 구현예에서, 상기 기재는 유리, 플라스틱, 금속, 및 콘크리트로 구성된 군에서 선택될 수 있다.
- [0018] 본 발명의 다른 구현예에서, 폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성하는 단계; 예비 중합체에 사슬연장제를 중합하여 폴리우레탄을 제조하는 단계; 및 폴리우레탄과 에어로겔을 혼합하여 단일 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는, 단일 복합재료 제조 방법이 제공된다.
- [0019] 예시적인 구현예에서, 상기 예비 중합체는 말단기를 -NCO로 가질 수 있다.
- [0020] 예시적인 구현예에서, 상기 중합은 40-80 °C 온도에서 10-60분 동안 수행될 수 있다.
- [0021] 예시적인 구현예에서, 상기 단일 복합재료 제조 단계는 에어로겔을 혼합물 전체 중량에 대하여 0.01-30 중량%로 혼합하는 것일 수 있다.
- [0022] 예시적인 구현예에서, 상기 단일 복합재료 제조 방법은 제조된 단일 복합재료를 경화시키는 단계;를 더 포함할 수 있다.

**발명의 효과**

- [0023] 본 발명의 일 구현예에 따른 단일 복합재료는 에어로겔에 폴리우레탄을 합성함으로써 열전도도가 매우 낮아 단열 및 난연이 가능하면서도 유연성이 부여된 코팅 가능한(coatable) 점에서 장점을 가지며, 이를 통하여 유연하면서도 코팅이 가능한 특성을 이용하여 다양한 구조물에 직간접적으로 적용하여 열에 의한 손상을 방지할 수 있는 효과를 얻을 수 있다.
- [0024] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 단일 복합재료는 그 자체로 활용하거나 유리, 플라스틱, 콘크리트 등 다양한 소재에 적용하여 열의 전달을 방지할 수 있다.
- [0025] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 단일 복합재료는 함침된 실리카가 우수한 분산상태로 유지되도록 하였으며, 충분한 실리카 함유 시 난연단계까지 도달할 수 있도록 하였다.
- [0026] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 단일 복합재료는 다량의 에어로겔을 폴리우레탄과 복합화함으로써 재료의 용융을 효과적으로 저감시키고, 이로 인해 고온 및 화재시 발생하는 유독물질 배출을 억제할 수 있으며, 폴리우레탄의 분자량을 조절하여 다양한 물성을 구현함으로써, 안전하면서도 친환경적인 단일재료를 제공할 수 있다.
- [0027] 또한, 본 발명의 일 구현예에 따른 단일 복합재료 제조방법은 기존의 단일소재에 비해 간단하면서도 효율적인 유무기 복합소재 합성 제조법을 제공한다.

**도면의 간단한 설명**

- [0028] 도 1은 본 발명의 구현예에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료의 합성 개략도를 도시한다.
- 도 2는 본 발명의 구현예에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료 시편을 도시한다.
- 도 3은 본 발명의 구현예에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료 시편의 신축성 실험 결과를 나타낸다.
- 도 4a 내지 4f는 본 발명의 구현예에 따른 를 주사전자현미경과 마이크로 CT를 통해 분석 결과를 도시하며, 에어로겔 함량에 따른 (a-c) 주사전자현미경 및 (d-f) 마이크로 CT 촬영 이미지를 각각 도시한다.
- 도 5a 내지 5d는 일반 폴리우레탄과 본 발명에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료의 열특성을 분석비교한 결과로서, Differential Scanning Calorimeter (DSC) 커브(도 5a), Thermogravimetric analysis (TGA) 커브(도 5b), Dynamic mechanical analysis (DMA) 커브(도 5c), 및 tan δ(도 5d)을 각각 도시한다.
- 도 6a 내지 6b는 에어로겔 함량 및 폴리우레탄 특성에 따른 열전도도(도 6a) 및 열방출을 시험결과(도 6b)를 나타내는 그래프를 도시한다.
- 도 7a 내지 7c는 본 발명의 구현예에 따른 유무기 복합소재가 기재상에 적용된 단일 복합 구조체의 단열효과를 비교한 그래프를 나타내며, 유리(도 7a), 플라스틱(도 7b), 콘크리트(도 7c) 기재에 적용한 결과를 도시한다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0029] 이하, 본 발명의 실시예들을 보다 상세하게 설명하고자 한다.
- [0030] 본문에 개시되어 있는 본 발명의 실시예들은 단지 설명을 위한 목적으로 예시된 것으로서, 본 발명의 실시예들은 다양한 형태로 실시될 수 있으며 본문에 설명된 실시예들에 한정되는 것으로 해석되어서는 안 된다.
- [0031] 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 실시예들은 본 발명을 특정한 개시 형태로 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 할 것이다.

[0033] **단열 복합재료**

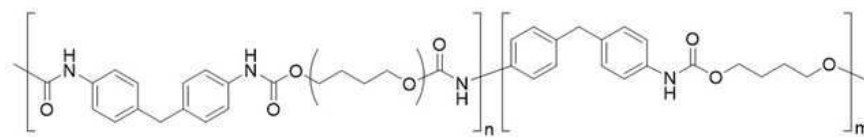
- [0034] 본 발명에 따른 일 구현예는 폴리우레탄; 및 에어로겔;을 포함하며, 상기 폴리우레탄은 상기 에어로겔을 서로 접촉시키고, 상기 접촉된 에어로겔은 단열 복합재료에 분산된 것인, 단열 복합재료를 제공한다.
- [0035] 일 구현예에서, 단열 복합재료에 포함된 폴리우레탄은 에어로겔 사이를 접촉하는 것일 수 있다. . 이를 통하여, 에어로겔이 갖는 대단히 낮은 기계적 물성을 보강하는 한편, 에어로겔의 다공성이 유지되었기 때문에 낮은 열전도도에 의한 단열 및 난연 특성을 가질 수 있다.
- [0036] 일 구현예에서, 상기 폴리우레탄은 폴리올 화합물, 이소시아네이트 화합물, 및 사슬연장제의 중합체일 수 있다. 예를 들어, 상기 폴리우레탄은 폴리올의 주사슬 길이 변화를 통해 기계적 물성을 간편하게 변화시킬 수 있고 이로써 투명성이 보존된 폴리우레탄을 중합할 수 있다.

- [0037] 상기 폴리올 화합물은 복수의 -OH기를 화합물의 말단에 갖거나 또는 사슬에 걸쳐 분포된 측면 -OH기를 포함하는 화합물일 수 있다. 예를 들어, 상기 폴리올 화합물은 -NCO기를 포함하지 않을 수 있으며, 예컨대 반응성 아미노기와 반응성을 갖는 작용기를 포함하지 않을 수 있다. 상기 -OH기는 이소시아네이트와 반응할 수 있다. 또한 예를 들어, 상기 폴리올 화합물은 분자당 2 내지 5 개의 -OH기를 갖는 폴리올일 수 있다. 상기 폴리올은 주사슬 길이 변화에 따라서 기계적 물성이 변화할 수 있다.

- [0038] 일 구현예에서, 상기 폴리올 화합물은 수산화기 또는 아민기를 말단기로 갖는 폴리올을 포함할 수 있다. 예를 들어, 상기 폴리올 화합물은 글리콜, 글리세롤, 펜타에리트리톨 등과 같은 수산화기를 갖는 폴리올, 및 폴리(테트라메틸렌 글리콜)(poly(tetramethylene glycol), PTMG)로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상의 화합물일 수 있다.

- [0039] 일 구현예에서, 상기 폴리우레탄은 아래의 화학식 1로 표현되는 것일 수 있다.

[0040] [화학식 1]



- [0041]
- [0042] 여기서 m과 n은 임의의 정수일 수 있다.

- [0043] 예를 들어, 폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성하고, 형성된 예비 중합체에 사슬연장제를 중합하는 2단계 합성법에 의하여 폴리우레탄을 제조하는 경우, 고른 분자량 컨트롤, 예컨대 1단계 중합법에 비하여 m:n 비율을 일정하게 중합할 수 있으며, 이에 제조된 폴리우레탄은 균일한 물성을 가질 수 있다.

- [0044] 일 구현예에서, 상기 폴리우레탄은 15,000 ~ 27,000 g/mol 범위의 수평균 분자량을 가질 수 있고, 37,000 ~ 55,000 g/mol 범위의 무게평균 분자량을 가질 수 있고, 예를 들어 16,627 ~ 25,920 g/mol 범위의 수평균 분자량을 가질 수 있고, 38,971 ~ 53,228 g/mol 범위의 무게평균 분자량을 가질 수 있다. 전술한 수평균 분자량 및/또는 무게평균 분자량 범위에서 상기 폴리우레탄은 다량의 에어로겔과 복합화될 수 있으며 이에 우수한 단열 특성을 가질 수 있다. 또한, 상기 폴리우레탄의 PDI 값은 2.05-2.34일 수 있으며, 이에 고른 분자량 분포도를 가질 수 있다.

- [0045] 일 구현예에서, 상기 폴리올 화합물의 분자량은 200-1500 g/mol일 수 있다. 예를 들어, 상기 폴리올 화합물은

500-1500 g/mol, 500-1400 g/mol, 500-1300 g/mol, 600-1200 g/mol, 700-1100 g/mol, 또는 800-1000 g/mol 범위의 분자량을 가질 수 있으며, 바람직하게 상기 폴리올 화합물의 분자량은 210-1000 g/mol 또는 500-1000 g/mol일 수 있다. 상기 폴리올 화합물의 분자량이 500 g/mol 미만인 경우, 유연성이 떨어질 수 있으며, 분자량이 1500 g/mol 초과인 경우, 기계적 물성이 약할 수 있다.

[0046] 폴리올 화합물의 분자량은 분자 길이와 관련되어 있으며, 분자길이의 변화에 따른 유리전이온도 (Tg) 변화특성을 조절할 수 있고, 이를 통하여 제조된 단열 복합재료의 유연성을 조절할 수 있다. 이를 통하여, 단열 복합재료의 기계적 물성을 향상시키고, 약 180°의 굽힘 운동으로 파손이 없는 유연성을 얻을 수 있다.

[0047] 일 구현예에서, 상기 단열 복합재료는 에어로겔을 단열 복합재료의 전체 중량에 대하여 0.01-30 중량%로 포함할 수 있다. 에어로겔을 단열 복합재료의 전체 중량에 대하여 0.01 중량% 미만으로 포함하는 경우, 충분한 단열 특성을 얻지 못할 수 있으며, 30 중량% 초과로 포함하는 경우, 에어로겔과 충분히 복합화되지 못할 수 있다.

[0048] 또한, 에어로겔은 상기 폴리올 화합물의 분자길이와 함께 기계적 물성에 영향을 줄 수 있으며, 예를 들어 에어로겔을 단열 복합재료의 전체 중량에 대하여 0.01-30 중량%로 포함할 때, 분자길이가 짧은 폴리우레탄(예컨대, 폴리올 화합물의 분자량이 210g/mol)는 외부 힘이 작용하였을 때 쉽게 부서질 수 있으며, 반면 분자길이가 긴 폴리우레탄(예컨대, 폴리올 화합물의 분자량이 1000g/mol)는 외부 힘이 작용하여 굽혀졌을 때 파손 없이 유연성을 얻을 수 있다.

[0049] 일 구현예에서, 상기 에어로겔은 실리카 에어로겔일 수 있다.

[0050] 일 구현예에서, 상기 이소시아네이트 화합물은 -NCO기를 포함하는 화합물로서, 예컨대 2-6개의 -NCO기를 포함하는 화합물일 수 있다. 예시적인 이소시아네이트 화합물은 방향족 이소시아네이트, 2,4- 또는 4,4'-메틸렌 디페닐 디이소시아네이트(MDI), 자일릴렌 디이소시아네이트(XDI), m- 또는 p-테트라메틸자일릴렌 디이소시아네이트(TMXDI), 톨루릴렌 디이소시아네이트(TDI), 디- 또는 테트라-알킬디페닐메탄 디이소시아네이트, 3,3'-디메틸디페닐-4,4'-디이소시아네이트(TODI), 1,3-페닐렌 디이소시아네이트, 1,4-페닐렌 디이소시아네이트, 나프탈렌 디이소시아네이트(naphthalene diisocyanate, NDI), 4,4'-디벤질디이소시아네이트, 지방족 이소시아네이트, 예컨대 수소화 MDI (H12MDI), 1-메틸-2,4-디이소시아나토시클로hex산, 1,12-디이소시아나토도데칸, 1,6-디이소시아나토-2,2,4-트리메틸hex산, 1,6-디이소시아나토-2,4,4-트리메틸hex산, 이소포론 디이소시아네이트(isophorone diisocyanate, IPDI), 테트라메톡시부탄-1,4-디이소시아네이트, 부탄-1,4-디이소시아네이트, hex산-1,6-디이소시아네이트(HDI), 이량체 지방산 디이소시아네이트, 디시클로hex일메탄 디이소시아네이트, 시클로hex산-1,4-디이소시아네이트, 에틸렌 디이소시아네이트 또는 이들의 조합을 포함할 수 있다.

[0051] 일 구현예에서 상기 단열 복합재료는 코팅형 단열 복합재료로서 다양한 이종소재에 용이하게 적용될 수 있다.

[0053] 단열 복합 구조체

[0054] 본 발명에 따른 일 구현예는 본 발명의 구현예에 따른 단열 복합재료; 및 기재를 포함하며, 상기 단열 복합재료는 기재 상에 적층된 것인 단열 복합 구조체를 제공한다.

[0055] 일 구현예에서, 상기 기재는 유리, 플라스틱, 금속, 목재, 및 콘크리트로 구성된 군에서 선택되는 하나 이상의 것일 수 있다.

[0056] 일 구현예에서, 상기 적층은 코팅에 의한 것일 수 있으며, 블레이드 코팅, 스프레이코팅, 스크린 프린팅, 스핀 코팅 등의 방법에 의할 수 있으나, 이에 한정되지 않고 본 기술분야에서 통상적으로 사용되는 방법으로 코팅될 수 있다.

[0057] 일 구현예에서, 상기 단열 복합재료의 적층 두께는 1 mm 이하일 수 있으며, 예를 들어 900 $\mu$ m 이하, 800 $\mu$ m 이하, 700 $\mu$ m 이하, 600 $\mu$ m 이하, 500 $\mu$ m 이하, 400 $\mu$ m 이하, 또는 300 $\mu$ m 이하일 수 있다. 단열 복합 재료의 적층 두께가 두꺼울수록 단열 효과가 이에 비례하여 증가하는 것이 일반적이나, 본원 발명에 따른 단열 복합 재료는 적은 양, 즉 1 mm 이하의 얇은 적층 두께에서도 우수한 단열 효과를 가질 수 있다. 구체적으로 100 $\mu$ m - 1mm, 300 $\mu$ m - 1mm, 500 $\mu$ m - 1mm, 700 $\mu$ m - 1mm, 200-800 $\mu$ m, 또는 300-600 $\mu$ m의 두께 범위일 수 있으며, 바람직하게는 상기 단열 복합재료의 적층된 두께는 300-500  $\mu$ m일 수 있으며, 전술한 범위의 적층 두께만으로도 우수한 단열 성능을 가질 수 있다.

[0059] 단열 복합재료 제조 방법

[0060] 본 발명에 따른 일 구현예는 폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성하



는 단계; 예비 중합체에 사슬연장제를 중합하여 폴리우레탄을 제조하는 단계; 및 폴리우레탄과 에어로겔을 혼합하여 단일 복합재료를 제조하는 단계;를 포함하는, 단일 복합재료 제조 방법을 제공한다.

- [0061] 먼저, 폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성할 수 있다. 상기 폴리올은 주사슬 길이 변화를 통하여 중합된 폴리우레탄의 기계적 물성을 간편하게 변화시킬 수 있고, 또한 폴리우레탄의 투명성을 보존할 수 있다.
- [0062] 일 구현예에서, 형성된 예비 중합체는 폴리올 분자 하나와 폴리올 분자의 양 말단에 이소시아네이트 화합물이 위치한 반응성 고분자 올리고머일 수 있다.
- [0063] 일 구현예에서, 상기 폴리올 및 이소시아네이트의 중합 반응은, 수분을 차단하고 부반응을 최소화 하기 위하여 질소 분위기에서 진행될 수 있다. 상기 중합 반응은 일 구현예에서, 상기 중합은 40-80 °C 온도에서 10-60분 동안 수행될 수 있다.
- [0064] 일 구현예에서, 상기 예비 중합체는 말단기를 -NCO로 가질 수 있다.
- [0065] 다음으로, 예비 중합체에 사슬연장제를 중합하여 폴리우레탄을 제조할 수 있다. 구체적으로 폴리올 및 이소시아네이트 화합물을 중합하여 예비 중합체(pre-polymer)를 형성하고, 형성된 예비 중합체에 사슬연장제를 중합하는 2단계 합성법에 의하여 폴리우레탄을 제조할 수 있다. 이러한 2단계 합성법을 사용하는 경우 고른 분자량 컨트롤이 가능한 장점을 가질 수 있으며, 이에 제조된 폴리우레탄은 균일한 물성을 가질 수 있다.
- [0066] 일 구현예에서, 상기 사슬연장제는 diol계 또는 triol계의 수산화기(-OH)를 포함하는 단분자 물질일 수 있다. 구체적으로 상기 사슬연장제는 글리콜 (glycol), 다이올 (diol), 글리세롤 (glycerol), 또는 트라이올 (triol) 중 하나 이상을 포함하는 단분자 물질일 수 있다. 또한, 아민(amine) 계열의 사슬연장제 또한 폴리우레탄 중합 모노머의 종류에 따라서 사슬연장제로 사용될 수 있다. 예를 들어, 상기 사슬연장제는 부탄디올(4-butanediol, BD)을 포함할 수 있다.
- [0067] 일 구현예에서, 상기 중합은 20-60 °C 온도에서 1-60분 동안 수행될 수 있다.
- [0068] 다음으로, 폴리우레탄과 에어로겔을 혼합하여 단일 복합재료를 제조할 수 있다. 한편, 폴리우레탄과 에어로겔을 혼합하여 단일 복합재료를 제조함으로써 공정상 시간을 단축시킬 수 있다.
- [0069] 일 구현예에서, 상기 단일 복합재료 제조 단계는 에어로겔을 혼합물 전체 중량에 대하여 0.01-30 중량%로 혼합하는 것일 수 있다. 0.01-30 중량%로 에어로겔을 함유하는 경우 열전도도가 감소하여 보온성이 향상될 수 있으며, 예컨대 약 72% 이상의 열전도도 감소 효과를 얻을 수 있다.
- [0070] 일 구현예에서, 상기 단일 복합재료 제조 방법은 제조된 단일 복합재료를 경화시키는 단계;를 더 포함할 수 있다.
- [0071] 일 구현예에서, 상기 경화 단계는 50-100°C 온도에서 수행될 수 있다. 50 °C 미만 또는 100 °C 초과 온도에서는 충분히 경화되지 못할 수 있다. 또한 예를 들어, 상기 경화 단계에 앞서 임의의 기재 상에 도포될 수 있다.
- [0072] 구체적으로, 상기 단일 복합재료 제조 방법은 제조된 단일 복합재료를 경화 단계에 앞서, 상기 단일 복합재료를 기재에 코팅하는 단계;를 더 포함할 수 있다. 상기 코팅은 블레이드 코팅, 스프레이코팅, 스크린 프린팅, 스핀 코팅 등의 방법에 의할 수 있다, 이에 한정되지 않고 본 기술분야에서 통상적으로 사용되는 방법으로 코팅될 수 있다.
- [0074] 이하, 실시예를 들어 본 발명의 구성 및 효과를 보다 구체적으로 설명한다. 그러나 이들 실시예는 본 발명에 대한 이해를 돕기 위해 예시의 목적으로만 제공된 것일 뿐 본 발명의 범주 및 범위가 하기 예에 의해 제한되는 것은 아니다.
- [0076] 실시예
- [0077] **[실시예 1-5] 단일 복합재료 제조**
- [0078] PU (polyurethane)은 PTMG (poly(tetramethylene glycol)), MDI (4,4'-methylenebis(phenyl isocyanate)), BD (4-butanediol (BD))로 구성된 2단계 응축방법을 이용하여 질소 분위기 하에서 수분이 제어된 조건에서 합성되었다.
- [0079] 먼저, MDI를 DMF에 녹인 후 MDI:PTMG의 몰비율 2:1으로 하여 자석교반기로 교반하여 프리폴리머를 합성하였다.

그런 뒤 clear하고 viscous한 프리폴리머가 30분정도 내로 만들어지면, 상온까지 냉각시켰다.

[0080] 사슬연장제로서 BD를 DMF에 희석시킨 후, 이를 주사기로 한방울씩 드랍하여 프리폴리머에 투여하였으며, 10분 정도 자석교반기로 교반한 후, 헥산(hexane)에 적신 실리카 에어로겔과 혼합하여 단일 복합 재료를 제조하였다. 샘플은 제조된 단일 복합 재료를 코팅한 후 80℃ 오븐에서 하루 건조시켜 제조하였다.

[0082] 아래의 표 1은 실시예에 따른 방법에 따라 에어로겔 함량 및 분량을 달리하여 제조한 단일 복합재료를 라벨링한 것이다.

표 1

Sample Code	Mole Ratio			MW of PTMG (g/mol)	Silica aerogel content (wt%)	M <sub>n</sub> (g/mol)	M <sub>w</sub> (g/mol)	PDI (M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub> )	Bulk Density (g/mL)
	PTMG	MDI	BD						
실시예 1 (PU210)	1	2	1	210	0	17515	40106	2.29	1.249
실시예 2(PU650)	1	2	1	650	0	25920	53228	2.05	1.180
실시예 3(PU1000)	1	2	1	1000	0	16627	38971	2.34	1.042
실시예 4(PU1000-15)					15				0.710
실시예 5(PU1000-30)					30				0.580

[0084] [시험예 1] 단일 복합재료의 구조 및 신축성 평가

[0085] 단일 복합재료 구조 평가

[0086] 도 4a 내지 4f는 본 발명의 실시예에 따른 단일 복합재료를 주사전자현미경과 마이크로 CT를 통해 분석한 결과를 나타내며, 단일 복합재료에서 에어로겔의 함량에 따른 구조를 확인할 수 있다.

[0087] 이를 통하여, 에어로겔의 함량이 각각 15 중량%(PU1000-15), 30 중량%(PU1000-30)로 커지더라도 에어로겔이 단일 복합재료에 고르게 분산된 것을 확인할 수 있다.

[0089] 신축성 실험

[0090] 도 2는 본 발명의 구현예에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료 시편을 도시하며, 도 3은 제조된 시편의 신축성 실험 결과를 나타낸다.

[0091] 도 3의 신축성 실험 결과를 참조하면, 에어로겔을 30 중량%로 포함한 경우에, 분자길이가 짧은 폴리우레탄을 포함하는 단일 복합재료는(도면에서 PU210-30)는 굽힘을 버티지 못하고 부서진 것을 확인할 수 있었다. 반면, 분자길이가 긴 폴리우레탄을 포함하는 단일 복합재료는(도면에서 PU650-30 및 PU1000-30)는 약 180°의 굽힘 운동에도 불구하고 시편의 파손 없이 플렉서블 물성을 유지하는 것을 확인할 수 있다.

[0092] 한편, 도 2에서 실시예 1-5의 제조된 단일 복합재료의 투명도를 확인할 수 있었다.

[0094] [시험예 2] 단일 복합재료의 단일 성능 평가

[0095] 도 5a 내지 5d는 일반 폴리우레탄과 본 발명에 따른 에어로겔-폴리우레탄 단일 복합재료의 열특성을 분석비교한 결과로서, (a) Differential Scanning Calorimeter (DSC) 커브, (b) Thermogravimetric analysis (TGA) 커브, (c) Dynamic mechanical analysis (DMA) 커브, 및 (d) tan δ을 각각 도시한다.

[0096] 또한 도 6a 내지 6b는 에어로겔 함량 및 폴리우레탄 특성에 따른 (a) 열전도도 및 (b) 열방출을 시험결과를 나타내는 그래프를 도시한다.

[0097] 또한, 실시예의 단일 복합재료의 에어로겔 함량 및 분량에 따른 단일 특성을 비교한 결과를 표 2에서 나타낸다.

표 2

	Peak HRR (W/g)	Total HR (kJ/g)	HR capacity (J/g · K)
PU210	221.0	17.8	222
PU650	219.1	23.0	205
PU1000	357.2	24.0	351
PU1000-15	248.6	21.5	246
PU1000-30	144.8	17.3	158

[0098]

[0099]

이를 통하여, 본 발명의 실시예에 따른 단열 복합재료는 최소 72% 이상의 열전도도 감소 효과를 가지며 이로 인하여 보온성이 향상되는 것을 확인할 수 있다. 또한 단열 복합재료의 연소 거동에 대하여, 열 방출을 및 열 방출 능력 등은 순수한 폴리우레탄보다 감소한 것을 확인할 수 있다.

[0101]

**[실시예 6-8] 단열 복합 구조체 제조**

[0102]

실시예 3의 폴리우레탄-에어로겔 단열 복합재료를 유리(실시예 6), 플라스틱(실시예 7), 및 콘크리트(실시예 8)에 각각 스펀코팅을 사용하여 약 1500RPM에서 약 10초간 코팅을 한 뒤, 약 80℃ 오븐에서 건조시켜 단열 복합 구조체를 제조하였다. 코팅된 두께는 300~500 μm 이었다.

[0104]

**[시험예 3] 기재 적용에 따른 단열 성능 평가**

[0105]

도 7a 내지 7c는 본 발명의 구현예에 따른 유무기 복합소재가 기재상에 적용된 단열 복합 구조체의 단열효과를 비교한 그래프를 나타내며, (a) 유리, (b) 플라스틱, (c) 콘크리트 기재에 적용한 결과를 도시한다. 약 130℃까지 가열하였으며, 약 350초 동안의 온도 변화를 관찰 하였다.

[0106]

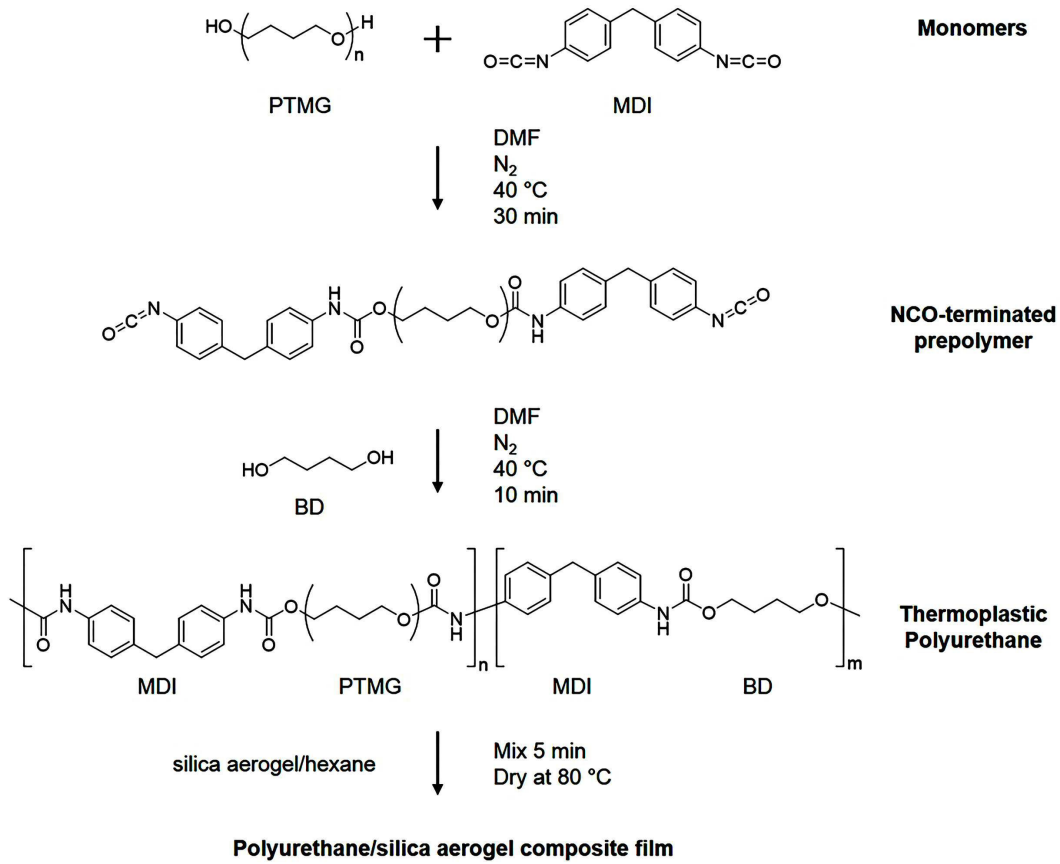
도 7a 내지 7c의 결과로부터, 약 300~500um 두께 수준의 단열 복합 재료 코팅 만으로도 약 130℃로 가열하는 경우, 단열 복합 재료 코팅을 하지 않은 샘플과 약 18~27℃ 정도의 단열효과를 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 또한, 단열 복합 재료 코팅에 따라서 초기에 가열되는 속도 차이가 많이 나고, 기재의 열전도도가 낮을수록 단열 복합 재료의 코팅에 따른 단열 성능은 더욱 커지는 것을 확인할 수 있었다.

[0108]

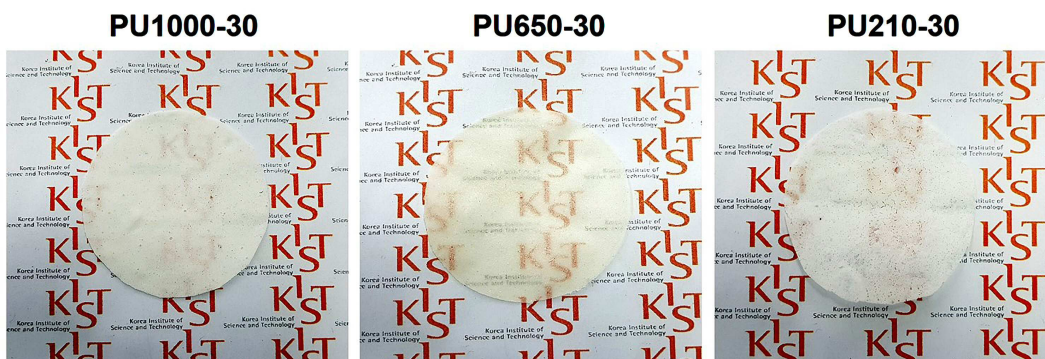
앞에서 설명된 본 발명의 실시예는 본 발명의 기술적 사상을 한정하는 것으로 해석되어서는 안된다. 본 발명의 보호범위는 청구범위에 기재된 사항에 의하여만 제한되고, 본 발명의 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자는 본 발명의 기술적 사상을 다양한 형태로 개량 변경하는 것이 가능하다. 따라서, 이러한 개량 및 변경은 통상의 지식을 가진 자에게 자명한 것인 한 본 발명의 보호범위에 속하게 될 것이다.

도면

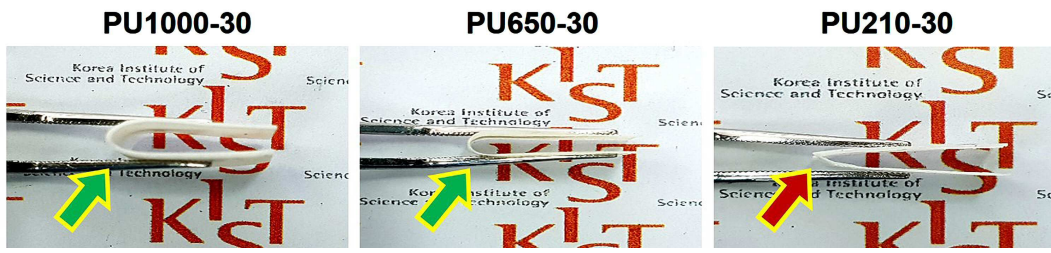
도면1



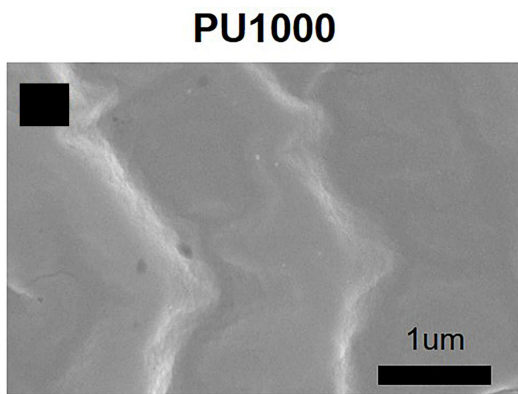
도면2



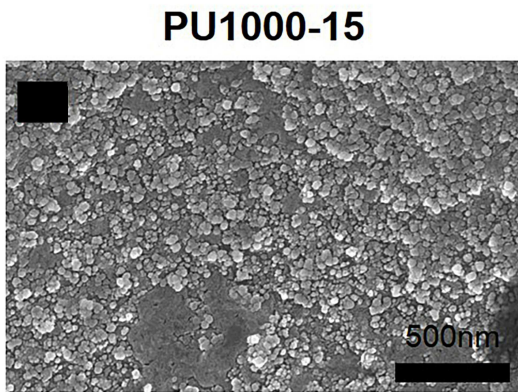
도면3



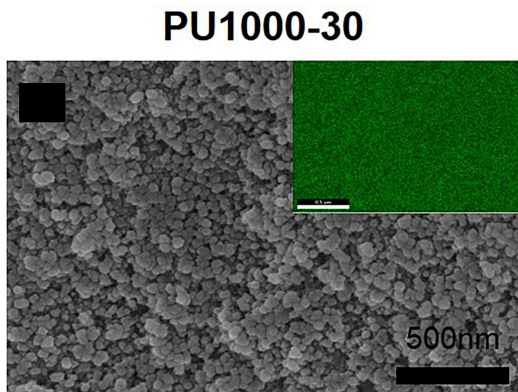
도면4a



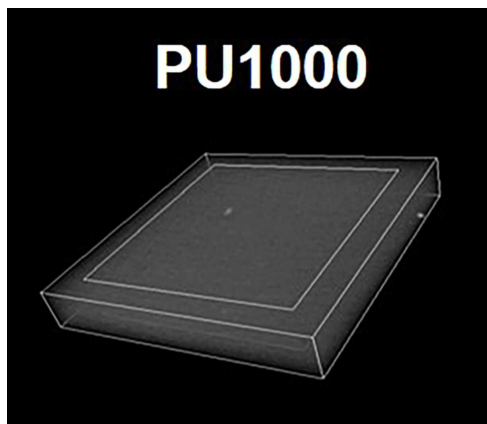
도면4b



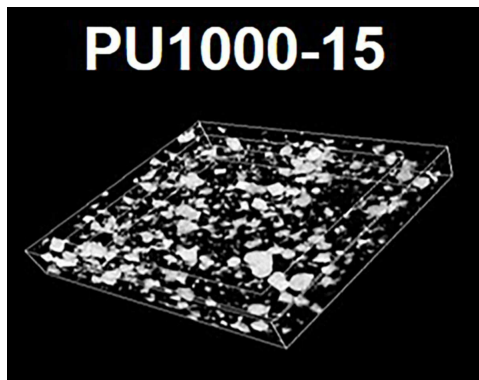
도면4c



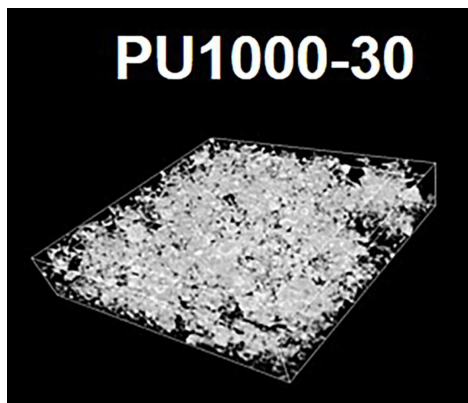
도면4d



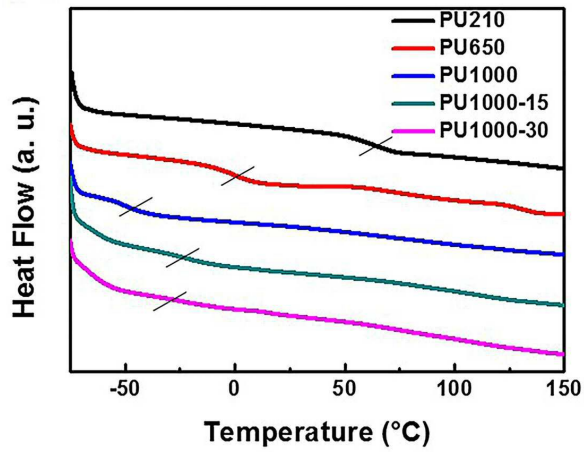
도면4e



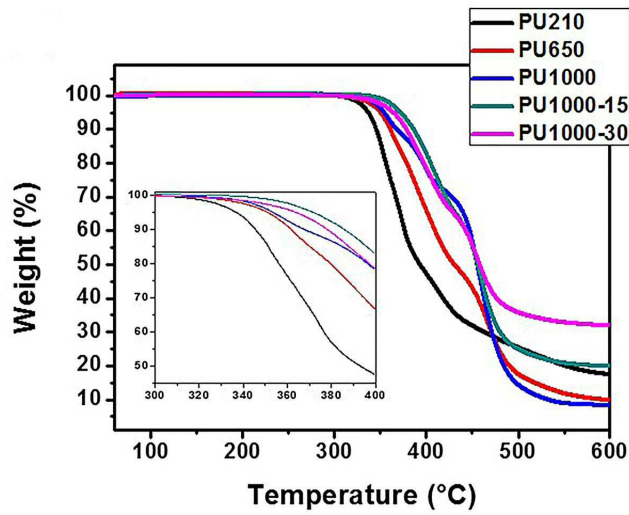
도면4f



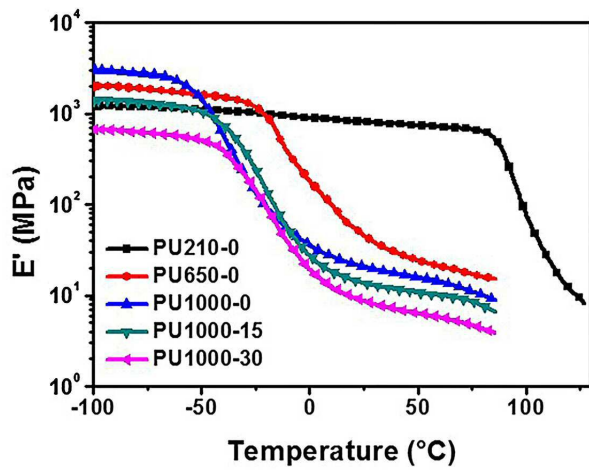
도면5a



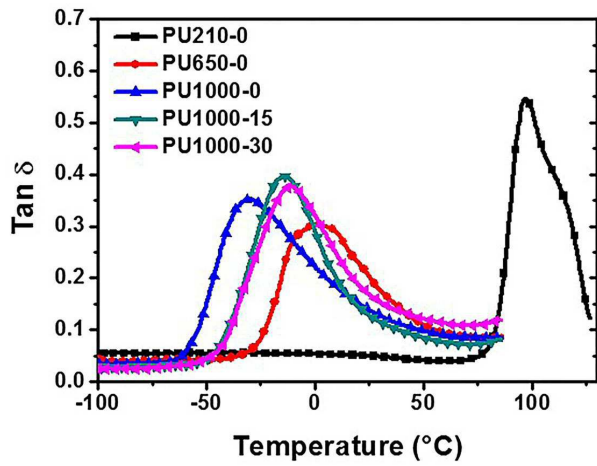
도면5b



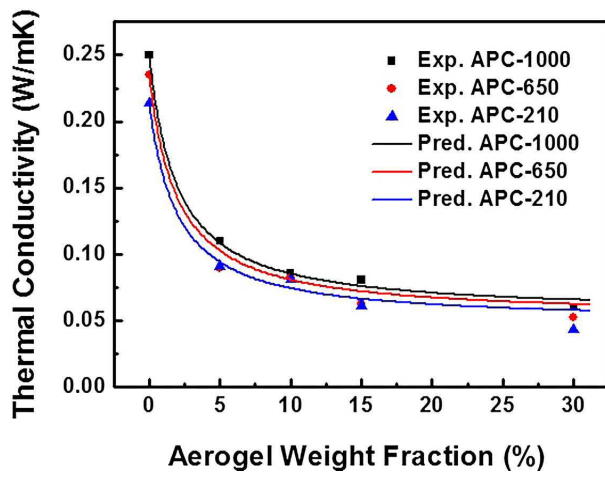
도면5c



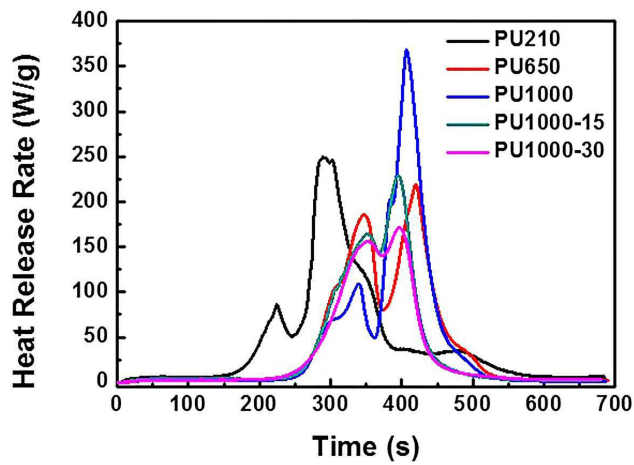
도면5d



도면6a

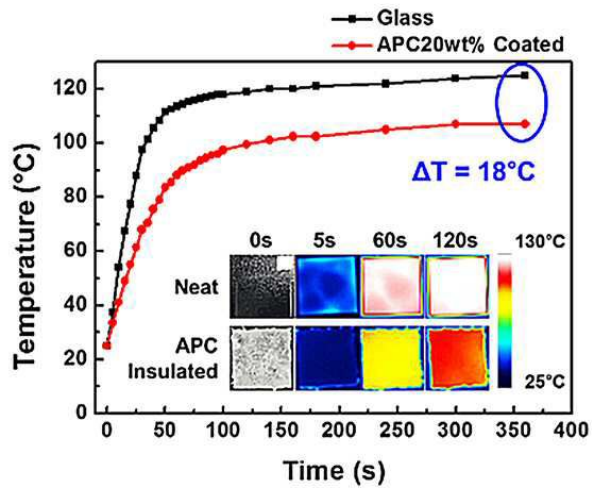


도면6b

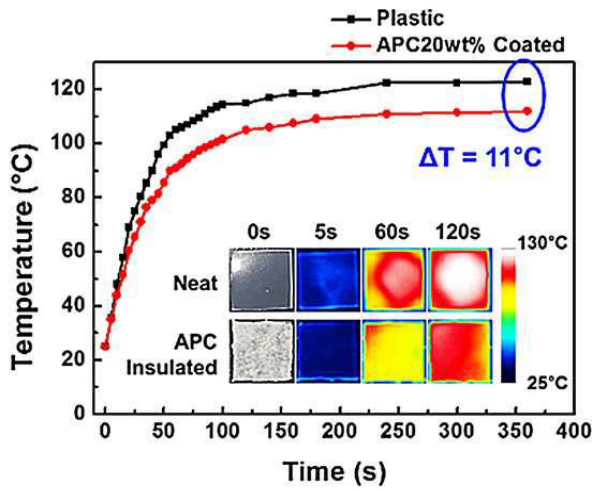




도면7a



도면7b



도면7c

