

출원번호통지서

관 인 생 략

출원번호통지서

출원일

특기사항

출원번호

출원인명칭

대리인성명

발명자성명

2024.04.17

심사청구(무) 공개신청(무) 참조번호(PSD23982)

10-2024-0051709 (접수번호 1-1-2024-0424101-68)  
(DAS접근코드16DD)

삼성전자주식회사(1-1998-104271-3)  
연세대학교 산학협력단(2-2005-009509-9)

특허법인세림(9-2011-100041-8)

홍성한 심우영 박석민 오동훈 서대우 임정수 정연경  
단열재 및 그 제조방법

특허청장

<< 안내 >>

1. 귀하의 출원은 위와 같이 정상적으로 접수되었으며, 이후의 심사 진행상황은 출원번호를 이용하여 특허로 홈페이지([www.patent.go.kr](http://www.patent.go.kr))에서 확인하실 수 있습니다.

2. 출원에 따른 수수료는 접수일로부터 다음날까지 동봉된 납입영수증에 성명, 납부자번호 등을 기재하여 가까운 은행 또는 우체국에 납부하여야 합니다.  
※ 납부자번호 : 0131(기관코드) + 접수번호

3. 귀하의 주소, 연락처 등의 변경사항이 있을 경우, 즉시 [특허고객번호 정보변경(경정), 정정신고서]를 제출하여야 출원 이후의 각종 통지서를 정상적으로 받을 수 있습니다.

4. 기타 심사 절차(제도)에 관한 사항은 특허청 홈페이지를 참고하시거나 특허고객상담센터(☎ 1544-8080)에 문의하여 주시기 바랍니다.  
※ 심사제도 안내 : <https://www.kipo.go.kr> - 지식재산제도

**【서지사항】**

<b>【서류명】</b>	특허출원서
<b>【참조번호】</b>	PSD23982
<b>【출원구분】</b>	특허출원
<b>【출원인】</b>	
<b>【명칭】</b>	삼성전자주식회사
<b>【특허고객번호】</b>	1-1998-104271-3
<b>【출원인】</b>	
<b>【명칭】</b>	연세대학교 산학협력단
<b>【특허고객번호】</b>	2-2005-009509-9
<b>【대리인】</b>	
<b>【명칭】</b>	특허법인세림
<b>【대리인번호】</b>	9-2011-100041-8
<b>【지정된변리사】</b>	최주영
<b>【포괄위임등록번호】</b>	2011-055096-8
<b>【발명의 국문명칭】</b>	단열재 및 그 제조방법
<b>【발명의 영문명칭】</b>	INSULATION AND METHOD FOR PREPARING THE SAME
<b>【발명자】</b>	
<b>【성명】</b>	홍성환
<b>【성명의 영문표기】</b>	SUNGHWAN HONG
<b>【주민등록번호】</b>	000000-0XXXXXX
<b>【우편번호】</b>	16677

【주소】 경기도 수원시 영통구 삼성로 129(매탄동)

【발명자】

【성명】 심우영

【성명의 영문표기】 Wooyoung Shim

【주민등록번호】 771010-1XXXXXX

【우편번호】 06713

【주소】 서울특별시 서초구 명달로4길 30, 501동 104호 (서초동, 서초5차대림이편한세상)

【발명자】

【성명】 박석민

【성명의 영문표기】 Seokmin Park

【주민등록번호】 970321-1XXXXXX

【우편번호】 04100

【주소】 서울특별시 마포구 서강로 136, 911호 (노고산동, 아이비타워)

【발명자】

【성명】 오동훈

【성명의 영문표기】 Donghoon Oh

【주민등록번호】 950909-1XXXXXX

【우편번호】 03726

【주소】 서울특별시 서대문구 성산로17길 7-33, 105호 (연희동)

【발명자】

【성명】 서대우

【성명의 영문표기】 DAEWOO SUH

【주민등록번호】 000000-0XXXXXX

【우편번호】 16677

【주소】 경기도 수원시 영통구 삼성로 129(매탄동)

【발명자】

【성명】 임정수

【성명의 영문표기】 LIM JUNGSOO

【주민등록번호】 000000-0XXXXXX

【우편번호】 16677

【주소】 경기도 수원시 영통구 삼성로 129(매탄동)

【발명자】

【성명】 정연경

【성명의 영문표기】 YEONKYOUNG JUNG

【주민등록번호】 000000-0XXXXXX

【우편번호】 16677

【주소】 경기도 수원시 영통구 삼성로 129(매탄동)

【출원언어】 국어

【취지】 위와 같이 특허청장에게 제출합니다.

대리인 특허법인세림

(서명 또는 인)

【수수료】

【출원료】	0	면	46,000	원
【가산출원료】	47	면	0	원
【우선권주장료】	0	건	0	원
【심사청구료】	0	항	0	원
【합계】	46,000원			
【첨부서류】	1.기타첨부서류_1통			

1 : 기타첨부서류

[PDF 파일 첨부](#)

위임장

【수임자】

【성명(명칭)] 특허법인 세림

【대리인코드] 9-2011-100041-8

【사건의 표시]

【출원번호]

【발명의 명칭] 단열재 및 그 제조방법

【위임자]

【성명(명칭)] 연세대학교 산학협력단

【출원인코드] 2-2005-009509-9

【사건과의 관계] 출원인

【위임사항]

1. 특허출원에 관한 모든 절차
2. 특허권 등록에 관한 모든 절차
3. 특허출원에 관한 거절결정불복심판청구관련 모든 절차
4. 특허심판에 관한 모든 절차

【위임일자] 2024. 04. 11.

위와 같이 특허청장(특허심판원장, 심판장)에게 제출합니다.

위임자(출원인) 연세대학교 산학협력단 (인)



## 【발명의 설명】

### 【발명의 명칭】

단열재 및 그 제조방법 {INSULATION AND METHOD FOR PREPARING THE SAME}

### 【기술분야】

【0001】 본 발명은 단열재 및 그 제조방법에 관한 것이다.

### 【발명의 배경이 되는 기술】

【0002】 에어로겔(aerogel)은 나노입자로 구성된 고다공성 물질로, 높은 기공률과 비표면적, 그리고 낮은 열전도도를 가져 고효율의 단열재, 방음재 등의 용도로 주목 받고 있는 소재이다.

【0003】 이러한 나노다공성 구조를 갖는 에어로겔은 촉매 및 촉매 담체, 방음재 등의 다양한 분야에 응용이 가능하나, 일반적으로 모노리스 형태로 제조되는 에어로겔은 높은 취성으로 인하여 작은 충격에도 쉽게 부서지는 등 매우 취약한 기계적 강도를 가지며, 다양한 두께 및 형태로의 가공이 어렵다는 문제가 있다.

【0004】 이러한 문제로 에어로겔은 우수한 단열 특성에도 불구하고 에어로겔 단독으로는 단열재로의 응용이 매우 어려운 실정이며, 이를 해결하기 위해 에어로겔과 다른 소재와의 복합체 형성을 통한 단열재 제조가 다양하게 시도되고 있다.

### 【발명의 내용】

【0005】 본 개시의 일 측면은 질석을 적층 조립한 질석 적층막 내부의 양이온 치환을 유도하여 층간거리를 넓힘으로써 저열전도도 특성을 가지며, 경도와 영

률이 향상되어 기계적 강도가 우수하고, 단열성능이 향상된 단열재 및 그 제조방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

【0006】 본 문서에서 이루고자 하는 기술적 과제는 이상에서 언급한 기술적 과제로 제한하지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 기술적 과제들은 아래의 기재로부터 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

【0007】 본 개시 사상에 따른 단열재는 질석이 적층 조립된 질석 적층막 및 에어로겔을 포함하며, 상기 질석 적층막은 평균 30 nm 이하 두께의 질석이 재적층되고, 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것,을 포함한다.

【0008】 본 개시 사상에 따른 단열재의 제조방법은, 질석을 적층 조립하여 질석 적층막을 제조하고, 상기 질석 적층막 내부의 양이온을 치환하고, 상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 에어로겔 졸을 장입하고, 상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 장입된 에어로겔 졸을 겔화시키는 것,을 포함한다.

### 【도면의 간단한 설명】

【0009】 도 1은 질석의 구조를 도시한 도면이다.

도 2는 본 개시의 일실시예에 따라 양이온 치환을 통해 질석 적층막의 층간 거리가 증가됨을 도시한 도면이다.

도 3은 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창을 통해 질석 적층막의 층간거리가 증가됨을 도시한 도면이다.



도 4는 본 개시의 일실시예에 따라 본 개시의 질석 적층막이 수직방향(out of plane)으로의 열전도도 특성을 나타냄을 도시한 도면이다.

도 5는 일반 팽창 질석이 수평방향(in plane)으로의 열전도도 특성을 나타냄을 도시한 도면이다.

도 6은 본 개시의 일실시예에 따른 단열재의 단면을 도시한 도면이다.

도 7은 본 개시의 일실시예에 따라 질석 적층막의 제조 시 적층되는 질석층의 수에 따른 열전도도를 도시한 도면이다.

도 8은 본 개시의 일실시예에 따라 치환된 양이온에 따른 질석 적층막의 평균 면간거리 및 평균 층간거리를 도시한 도면이다.

도 9는 본 개시의 일실시예에 따라 질석 적층막 내부의 양이온이  $\text{Ca}^{2+}$ 로 치환된 질석 적층막을 도시한 도면이다.

도 10은 본 개시의 일실시예에 따라 질석 적층막 내부의 양이온이  $\text{Li}^+$ 로 치환된 질석 적층막과,  $\text{Ca}^{2+}$ 로 치환된 질석 적층막의 질석 적층막 두께에 따른 열전도도를 도시한 도면이다.

도 11은 본 개시의 일실시예에 따라 질석 적층막 내부의 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간 양이온에 따른 기계적 경도 및 영률을 도시한 도면이다.

도 12는 본 개시의 일실시예에 따른 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 도시한 도면이다.

도 13은 본 개시의 일실시예에 따라 질석 적층막 내부의 양이온이 치환된

$\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과 열팽창한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 열전도도를 도시한 도면이다.

도 14는 본 개시의 일실시예에 따라  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 기공분포를 측정결과를 도시한 도면이다.

도 15는 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 SEM 이미지를 도시한 도면이다.

도 16은 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 FT-IR 분석 결과를 도시한 도면이다.

도 17은 본 개시의 일실시예에 따라  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 제조 과정을 도시한 도면이다.

도 18은 본 개시의 일실시예에 따라  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와 진공함침하여 제조한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재를 도시한 도면이다.

도 19는 본 개시의 일실시예에 따라  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와,  $\text{Li}^{+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 질석 적층막 두께에 따른 열전도도를 도시한 도면이다.

도 20은 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 제조 과정을 도시한 도면이다.

도 21은 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와 진공함침하여 제조한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재를 도시한

도면이다.

도 22는 본 개시의 일실시예에 따라 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 부피분율(volumn fraction)에 따른 열전도도를 도시한 도면이다.

도 23은 본 개시의 일실시예에 따라 진공함침하여 제조한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 단면 SEM 사진을 도시한 도면이다.

도 24는 본 개시의 일실시예에 따라  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와, 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 진공함침 유무에 따른 열전도도를 나타낸 도면이다.

#### 【발명을 실시하기 위한 구체적인 내용】

【0010】 이하에서는 본 발명의 바람직한 실시형태들을 설명한다. 그러나, 본 발명의 실시형태는 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 기술사상이 이하에서 설명하는 실시형태로 한정되는 것은 아니다. 또한, 본 발명의 실시형태는 당해 기술분야에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 더욱 완전하게 설명하기 위해서 제공되는 것이다.

【0011】 본 출원에서 사용하는 용어는 단지 특정한 예시를 설명하기 위하여 사용되는 것이다. 때문에 가령 단수의 표현은 문맥상 명백하게 단수여야만 하는 것이 아닌 한, 복수의 표현을 포함한다. 덧붙여, 본 출원에서 사용되는 "포함하다" 또는 "구비하다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 단계, 기능, 구성요소 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 명확히 지칭하기 위하여 사용되는 것이지, 다른

특징들이나 단계, 기능, 구성요소 또는 이들을 조합한 것의 존재를 예비적으로 배제하고자 사용되는 것이 아님에 유의해야 한다.

【0012】 한편, 다르게 정의되지 않는 한, 본 명세서에서 사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가진 것으로 보아야 한다. 따라서, 본 명세서에서 명확하게 정의하지 않는 한, 특정 용어가 과도하게 이상적이거나 형식적인 의미로 해석되어서는 안 된다. 가령, 본 명세서에서 단수의 표현은 문맥상 명백하게 예외가 있지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다.

【0013】 또한, 본 명세서의 "약", "실질적으로" 등은 언급한 의미에 고유한 제조 및 물질 허용오차가 제시될 때 그 수치에서 또는 그 수치에 근접한 의미로 사용되고, 본 발명의 이해를 돕기 위해 정확하거나 절대적인 수치가 언급된 개시 내용을 비양심적인 침해자가 부당하게 이용하는 것을 방지하기 위해 사용된다.

【0014】 에어로겔은 다공성 구조의 소재로, 경량성을 제공하며 우수한 단열 특성을 제공하나, 에어로겔의 높은 기공률에 의한 낮은 기계적 강도를 가진다. 한편, 실리카 에어로겔을 활용한 복합체들은 열전도도와 기계적 강도에 다양한 분포를 보이거나, 고강도 및 저열전도도에 있어서 한계가 있었다.

【0015】 이에 본 개시에서는 기계적 강도가 우수하고, 단열성능을 가지는 질석을 활용하여 에어로겔의 강도 및 저열전도도의 문제점을 해결하고자 한다.

【0016】 이하에서는 본 개시의 일실시예에 따른 단열재에 대하여 상세하게 설명한다.

【0017】 본 개시의 단열재는 질석이 적층 조립된 질석 적층막 및 에어로겔을 포함하며, 상기 질석 적층막은 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것,을 포함한다.

【0018】 도 1에 도시한 바와 같이, 질석은 2개의 사면체 규산염 층(tetrahedral silicate sheet) 사이에 끼워진 마그네슘 기반 팔면체 층(Mg-based octahedral sheet)으로 구성되고, 층상 규산염(pylosilicate)에 속하는 층상형 광물로, 질석층 내는 공유결합이나 이온결합 등과 같은 강한 화학결합을 하는 반면, 질석층 간은 반데르발스 힘 등과 같은 약한 인력에 의해 결합된다.

【0019】 이에 본 개시에서는 상기 질석을 박리하여 재적층함으로써 약한 인력에 의해 결합된 질석층간의 거리를 제어하여 수직방향(out of plane)의 열전도도를 낮춤으로써 저열전도도 특성을 갖는 질석 적층막을 제공하고자 한다.

【0020】 상기 질석 적층막은 질석을 박리하여 재적층한 것일 수 있다.

【0021】 구체적으로, 질석을 평균 30 nm 이하 두께, 바람직하게는 평균 10 nm 이하 두께, 더욱 바람직하게는 평균 2 nm 두께로 박리한 후 상기 박리된 질석을 재적층한 질석 적층막일 수 있다. 상기 질석의 두께가 30 nm를 초과할 경우에는 질석 박리 후 재적층 시 조립이 어려울 수 있어 적층막으로의 제조가 곤란할 수 있다.

【0022】 또한 상기 질석의 평균직경은 100 nm 내지 90  $\mu\text{m}$ 일 수 있고, 바람직하게는 100 nm 내지 10  $\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 가장 바람직하게는 100 nm 내지 800 nm일 수 있다. 질석의 평균직경이 상기 범위를 만족할 경우 질석 적층막의 열전도도를 낮출 수 있으며, 질석 적층막 두께 방향으로의 질석층 사이의 거리를 확보할 있어 우수한 저열전도도 특성을 확보할 수 있다.

【0023】 상기 질석이 박리 재적층된 질석 적층막은, 질석 층 내부는 강한 결합을 하는 반면 질석 층과 층 간에는 약한 반데르발스 결합을 하게 되며, 이러한 질석 적층막 층간의 약한 반데르발스 결합에 의해 수 Å 수준의 층간거리를 제공할 수 있다. 구체적으로, 상기 질석 적층막은 평균 층간거리가 1 Å 내지 9 Å일 수 있다.

【0024】 또한 질석의 경우 배향이 랜덤(random)하여 열전달 시 질석의 면방향을 타고 열이 흐르는 수평방향(in plane)의 열전도도 특성을 갖는다. 그러나, 상기 질석을 재적층한 질석 적층막의 경우 질석을 적층막의 두께방향으로 배향하도록 조립함으로써 열전달 시 질석 적층막의 두께 방향으로 열이 흐르는, 즉 수직방향(out of plane)으로의 열전도도 특성을 가지며, 이로써 질석 적층막 자체의 열전도도를 최대한 낮출 수 있다.

【0025】 또한 상기 질석 적층막은 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것일 수 있다.

【0026】 상기 양이온이 치환된 질석 적층막은, 질석 내부의 사면체 층에 존재하는 4가의 규소(Si) 등과 같은 양이온을 다른 양이온으로 치환할 수 있다. 구체적으로, 질석 내부의 사면체 층에 존재하는 양이온보다 수화 직경이 큰 양이온으로 치환함으로써 질석 적층막 내의 질석층 간격을 벌어지게 하여 열전도도를 낮춤과 동시에 에어로겔 장입을 위한 충분한 공간 확보가 가능하여 단열 성능을 향상시킬 수 있다.

【0027】 상기 치환가능한 양이온은 질석층 내부의 사면체 층에 존재하는 양이온보다 수화 직경이 큰 양이온을 사용할 수 있으며, 확보하고자 하는 층간거리에 따라 그 종류를 적절히 선택할 수 있다. 예를 들어, 상기 양이온은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^{+}$ ,  $\text{K}^{+}$ ,  $\text{Na}^{+}$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.

【0028】 또한 상기 질석층 내부에 존재하는 양이온보다 큰 수화직경을 갖는 양이온은 1회 치환될 수도 있고, 2회 이상에 걸쳐 치환될 수도 있다.

【0029】 도 2는 질석 적층막 내부의 양이온 치환을 통해 질석 적층막의 층간거리를 증가시킴을 도시한 도면이다. 도 2에 도시한 바와 같이, 질석 적층막 내부에 존재하는 양이온보다 큰 수화 직경을 갖는 양이온으로 치환되며, 이때 치환되는 양이온의 수화 직경에 따라 질석 층간거리(도 2의 2)를 각각 달리 조절할 수 있다.

【0030】 상기와 같이 양이온이 치환된 적층막은 평균 면간거리(d-spacing)가 10 Å 내지 15 Å이고, 평균 층간거리(interlayer spacing)가 4 Å 내지 10 Å일

수 있다. 상기 면간거리(도 2의 1)는 도 2에 도시한 바와 같이 질석층과 인접한 질석층과의 간격을 포함하는 거리를 의미하며, 상기 층간거리(도2 2)는 질석층과 인접한 질석층과의 간격 사이의 거리를 의미하는 것이다.

【0031】 또한 상기 질석 적층막은 열팽창된 것일 수 있다.

【0032】 상기 열팽창은 고온에 단시간 노출시키는 방법으로 수행될 수 있다.

【0033】 도 3은 열팽창을 통해 질석 적층막의 층간거리를 증가시킴을 나타낸 도면이다. 도 3에 도시한 바와 같이, 순간적인 열에 의해 질석층 사이에 존재하는 수분이 증발하여 즉각적으로 질석 적층막이 팽창하게 되며, 상기 열팽창을 통해 질석층과 질석층 사이의 간격, 즉 질석 층간거리를 벌어지게 하여 수 nm 수준의 층간거리를 제공할 수 있고, 이로써 질석 적층막의 열전도도를 낮춤과 동시에 단열 성능을 향상시킬 수 있다.

【0034】 상기 열팽창은 800℃ 이상의 고온에서 15초 이하로 노출시켜 수행될 수 있다.

【0035】 상기 열팽창된 질석 적층막은 평균 층간거리(interlayer spacing)가 200 nm 내지 100  $\mu\text{m}$ 일 수 있다.

【0036】 상기와 같이 질석 적층막 내부의 양이온이 치환되거나, 열팽창된 질석 적층막은 열전도도가 34 mW/m·K 내지 44 mW/m·K일 수 있다. 질석 적층막의 열전도도가 상기 범위 내일 경우 단열재 제조 시 열전도도를 낮출 수 있어 저열전도도 특성을 갖는 단열재의 제조가 가능하다.



【0037】 또한 상기 질석 적층막 내부의 양이온이 치환되거나, 열팽창된 질석 적층막은 평균 두께가 100  $\mu\text{m}$  내지 800  $\mu\text{m}$ 인 것이 바람직하며, 더욱 바람직하게는 200  $\mu\text{m}$  내지 600  $\mu\text{m}$ 인 것이다. 상기 질석 적층막의 800  $\mu\text{m}$ 를 초과할 경우에는 질석 적층막의 열전도도 저하 효과가 열위하여 저열전도도 특성을 갖는 단열재의 제조가 어려울 수 있다.

【0038】 상기와 같이 본 개시에서는 질석을 적층 조립한 질석 적층막과, 상기 질석 적층막 내부의 양이온을 치환하거나, 열팽창을 통해 질석층 사이의 층간거리를 확보함으로써 열전도도를 낮출 수 있고, 확보된 질석층 사이의 층간에 에어로겔을 더 많이 장입할 수 있어 단열성능 또한 향상시킬 수 있다.

【0039】 상기 질석 적층막은 단열재에 70 부피% 내지 98 부피%로 포함될 수 있으며, 바람직하게는 85 부피% 내지 96 부피%로 포함되는 것이다. 상기 질석 적층막의 함량이 70 부피% 미만일 경우에는 단열재의 기계적 강성 및 저열전도도 특성이 열위할 수 있으며, 98 부피%를 초과할 경우에는 상대적으로 에어로겔의 함량이 낮아 단열 성능이 저하될 수 있다.

【0040】 또한 본 개시의 단열재에 포함되는 에어로겔은, 무기 물질, 유기 물질, 또는 유기-무기 조합물을 포함할 수 있다. 에어로겔은 다수의 기공과 이러한 기공들을 둘러싸는 극미세 입자들이 서로 연결된 나노구조(nanostructure)를 포함한다. 상기 기공 내부는 재료의 적용분야 또는 방법에 따라 진공 상태이거나 산소, 헬륨, 질소, 탄소 등의 임의의 기체로 충전될 수 있다.

【0041】 상기 무기 물질은 실리카(silica), 티타니아(titania), 지르코니아

(zirconia), 알루미나(alumina), 하프니아(hafnia), 이트리아(yttria), 세리아(ceria) 또는 이들의 조합물 중 선택된 하나 이상일 수 있다.

【0042】 상기 유기 물질은 폴리아크릴레이트(polyacrylate), 폴리올레핀(polyolefin), 폴리스틸렌(polystyrene), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile), 폴리우레탄(polyurethane), 폴리이미드(polyimide), 폴리에테르(polyether), 레조시놀 포름알데히드(resorcinol formaldehyde), 키토산(chitosan), 폴리메틸 메타크릴레이트(polymethyl methacrylate), 트리알콕시실릴터미네이티드 폴리디메틸실옥산(trialkoxysilylterminated polydimethylsiloxane), 폴리옥시알킬렌(polyoxyalkylene) 또는 이들의 조합물 중 선택된 하나 이상일 수 있다.

【0043】 에어로겔의 입자의 크기는 제트밀 또는 크기를 감소시키는 다른 방법에 의하여 원하는 크기로 감소 또는 분급할 수 있으며, 통상 분말상의 에어로겔은 입경이 1  $\mu\text{m}$  내지 1 mm인 것이 바람직하다.

【0044】 상기 에어로겔은 단열재에 2 부피% 내지 30 부피%로 포함될 수 있으며, 바람직하게는 4 부피% 내지 15 부피%로 포함되는 것이다. 상기 에어로겔이 2 부피% 미만일 경우에는 단열 성능이 열위할 수 있으며, 30 부피%를 초과할 경우에는 기계적 강성 및 저열전도도 특성이 열위할 수 있다.

【0045】 또한 상기 단열재는 상술한 바와 같이 질석이 재적층된 질석 적층막 내부의 양이온이 치환되거나 열팽창된 질석 적층막을 포함함으로써 열전도도가 20 mW/m·K 내지 35 mW/m·K인 저열전도도 특성을 갖는다.

【0046】 도 4에 도시한 바와 같이, 본 개시의 단열재는 질석 적층막의 두께 방향, 즉 수직방향(out of plane)으로의 열전도도 특성을 갖게 되며, 열전달 시 열이 질석 적층막의 수직방향으로 흐르게 되어 열전도도를 최대한 낮출 수 있다. 반면, 도 5에 도시한 바와 같이 일반 팽창 질석을 포함하는 경우 팽창 질석이 랜덤(random)하게 배향되어 면방향, 열전달 시 열이 질석의 면을 타고 흐르게 되어 저 열전도도를 구현하기 어렵게 된다.

【0047】 도 6은 상술한 바와 같은, 본 개시의 일실시예에 따른 단열재의 단면을 도시한 도면이다. 도 6에 도시한 바와 같이, 본 개시의 단열재(1)는 질석이 적층 조립된 질석 적층막(10)의 층간 사이에 에어로겔(20)을 포함한다. 이때, 상기 질석 적층막(10)은 상술한 바와 같이 양이온이 치환되거나, 열팽창한 것일 수 있다.

【0048】 이하에서는 본 개시의 일실시예에 따른 단열재의 제조방법을 자세히 설명한다.

【0049】 본 개시의 단열재의 제조방법은, 질석을 박리 재적층하여 질석 적층막을 제조하고, 상기 질석 적층막 내부의 양이온을 치환하고, 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 에어로겔 줄을 장입하고, 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 장입된 에어로겔을 겔화시키는 것,을 포함한다.

【0050】 먼저 질석을 적층 조립하여 질석 적층막을 제조한다.

【0051】 상기 질석 적층막은 질석을 고온에 노출시켜 팽창을 유도한 후, 상기 팽창된 질석을 박리하고 재적층하여 제조하는 통상의 방법으로 제조할 수 있다.

【0052】 즉, 상기 질석을 고온에 노출시키게 되면 질석 내부에 존재하는 수분이 급격하게 기화되어 질석이 팽창되게 된다.

【0053】 이를 위해, 상기 질석은 800 ℃ 이상의 온도, 바람직하게는 800 ℃ 내지 950 ℃의 온도의 분위기에 30 분 내지 60 분 동안 노출시키거나, 1000 ℃ 이상의 불에 30 분 내지 60 분 동안 직접 노출시키는 방법으로 팽창을 유도할 수 있다.

【0054】 상기 팽창 유도 온도가 800 ℃ 미만일 경우에는 질석 내부에 존재하는 수분의 기화가 잘 이루어지지 않아 질석의 팽창이 원활히 이루어지지 않을 수 있다. 또한 열팽창 유도 시간이 30 분 미만일 경우에는 질석 내부의 수분의 기화가 충분히 일어나지 못할 수 있으며, 60 분을 초과할 경우에는 팽창된 질석이 다시 수축하거나 변형이 생길 수 있다.

【0055】 상기 팽창된 질석은 평균 30 nm 이하, 바람직하게는 평균 10 nm 이하 두께, 더욱 바람직하게는 2 nm 이하의 두께로 박리하고 재적층하여 질석 적층막을 제조한다. 상기 박리 시 질석의 평균 두께가 30 nm를 초과할 경우에는 질석 박리 후 재적층이 어려워 적층막으로의 제조가 곤란할 수 있다.

【0056】 상기와 같이 제조된 질석 적층막은, 수평방향으로의 열전도도 특성을 갖는 질석을 적층막의 두께방향으로 배향하도록 재적층함으로써 질석 적층막의

수직방향으로의 열전도도 특성을 갖게 되어 질석 적층막 자체의 열전도도를 최대한 낮게 구현할 수 있다.

【0057】 이어서, 상기 질석 적층막의 내부에 존재하는 양이온을, 상기 양이온보다 수화 직경이 큰 양이온으로 치환한다.

【0058】 상기 수화 직경이 큰, 치환가능한 양이온으로는  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상이 포함될 수 있으며, 상기 양이온으로 1회 이상에 걸쳐 치환할 수도 있다.

【0059】 상기와 같은 양이온의 치환으로 질석 적층막의 층간거리를 넓힐 수 있으며, 이에 따라 열전도도를 낮춤과 동시에 에어로겔 장입을 위한 충분한 공간을 확보할 수 있다.

【0060】 또한 상기 양이온이 치환된 질석 적층막은 열팽창하는 것을 더 포함할 수 있다.

【0061】 상기 열팽창은 고온에서 단시간 수행될 수 있으며, 구체적으로 800℃ 이상의 온도에서 15초 이하로 가열하여 수행될 수 있다. 상기 열팽창 시 온도가 800℃ 미만일 경우에는 질석층 사이에 존재하는 수화된 양이온의 탈수가 잘 일어나지 않을 수 있으며, 15초를 초과할 경우에는 질석층 사이의 공간이 너무 넓어져 질석 적층막의 기계적 물성이 약해질 수 있다.

【0062】 즉, 본 개시에서는 질석을 박치 재적층하여 질석 적층막의 두께방향으로 질석이 배향되도록 조립하고, 상기 재적층된 질석 적층막 내부의 양이온을 수

화 직경이 큰 양이온으로 치환하거나 열팽창을 통해 질석층 사이의 거리를 더 넓게 확보함으로써 열전도도를 낮출 수 있는 동시에 에어로겔 장입을 위한 충분한 공간 확보가 가능하여 단열 성능 또는 향상시킬 수 있다.

【0063】 상기 양이온 치환된 적층막 및 열팽창된 적층막에 대한 구체적인 설명은 상술한 바와 동일하므로 생략한다.

【0064】 이어서, 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 에어로겔 졸을 장입한다.

【0065】 구체적으로, 에어로겔 졸(sol)에 상기 양이온이 치환되거나 열팽창된 적층막을 함침시켜 질석층 사이에 에어로겔 졸이 장입되도록 한다.

【0066】 이때, 에어로겔 졸의 장입량 증가를 위해 상기 에어로겔 졸은 진공 함침(vacuum impregnation)하는 것이 바람직하다.

【0067】 상기 진공 함침은 0.05 MPa 내지 0.10 MPa에서 5 분 내지 15 분 동안 수행되는 것이 바람직하며, 더욱 바람직하게는 0.088 MPa에서 10 분 동안 수행되는 것이다. 상기 진공 함침 시 압력 범위가 너무 낮을 경우에는 에어로겔 졸의 장입량의 증가율이 저하될 수 있으며, 압력 범위가 너무 높을 경우에는 제조된 에어로겔 복합체의 기계적 물성이 저하될 수 있다. 또한 시간이 너무 짧을 경우에는 에어로겔 졸의 장입량이 부족할 수 있으며, 시간이 너무 길 경우에는 시간 증가에 따른 장입효과가 미미할 수 있으며, 제조공정이 길어질 수 있다.

【0068】 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 장입된 에어로겔 졸을 겔화시켜 단열재를 제조한다.

【0069】 이때, 에어로겔 졸의 겔화를 위하여 겔화용 촉매를 첨가할 수도 있다.

【0070】 상기 겔화용 촉매는 에어로겔 졸의 pH를 증가시켜 겔화를 촉진하는 역할을 하며, 염기성 촉매 등을 사용할 수 있다.

【0071】 상기 염기성 촉매의 예로는, 수산화나트륨, 수산화칼륨, 수산화암모늄, 테트라메틸암모늄 하이드록사이드, 테트라에틸암모늄 하이드록사이드, 테트라프로필암모늄 하이드록사이드, 테트라부틸암모늄 하이드록사이드, 메틸아민, 에틸아민, 이소프로필아민, 모노이소프로필아민, 디에틸아민, 디이소프로필아민, 디부틸아민, 트리메틸아민, 트리에틸아민, 트리이소프로필아민, 트리부틸아민, 콜린, 모노에탄올아민, 디에탄올 아민, 2-아미노에탄올, 2-(에틸아미노)에탄올, 2-(메틸아미노)에탄올, N-메틸 디에탄올아민, 디메틸아미노에탄올, 디에틸아미노에탄올, 니트릴로트리에탄올, 2-(2-아미노에톡시)에탄올, 1-아미노-2-프로판올, 트리에탄올아민, 모노프로판올아민 및 디부탄올아민 중 선택된 하나 이상을 포함할 있다.

【0072】 또한 상기 겔화 반응이 완료된 이후에는 일정 온도에서 방치하여 화학적 변화가 완전이 이루어지도록 숙성하는 단계를 더 포함하여 기계적 안정성을 강화시킬 수 있다. 특히, 상시 숙성은 초음계 건조를 통해 수행되는 것이 바람직하다. 이후 표면개질단계를 더 포함하여 겔 표면을 소수화시킴으로써 공기 중 수분

흡수를 억제하여 저열전도도를 유지하게 할 수 있다.

【0073】상기와 같은 본 개시의 단열재는 질석 적층막을 포함하여 에어로겔 단일체와 비교하여 경도 및 영률이 크게 향상되어 기계적 강도가 우수하고, 열전달체에 대해 수직방향(out of plane)의 열전도도 특성을 가져 갖는 질석 적층막을 포함하여 열전도도를 낮출 수 있다. 뿐만 아니라, 양이온 치환되거나 열팽창으로 층간거리를 넓힘으로써 열전도도를 더욱 낮출 수 있고, 보다 많은 에어로겔의 장입이 가능하여 단열 성능 또한 우수하다.

【0074】이하, 본 발명을 하기 실시예에 의하여 더욱 상세하게 설명한다. 단 하기 실시예는 본 발명을 예시하기 위한 것일 뿐, 본 발명의 범위가 이들만으로 한정되는 것은 아니다.

#### 【0075】 제조예 1. 양이온 치환 질석 적층막 제조

【0076】질석을 전기로 내에서 800℃에서 60분간 유지시켜 열팽창 반응을 유도하였다. 상기 열팽창된 질석을 2nm 두께를 갖도록 박리시킨 후 재적층하여 질석 적층막을 제조하였다. 상기 질석 적층막의 내부에 존재하는 양이온을 하기 표 1의 양이온으로 치환하여, 양이온이 치환된 질석 적층막을 제조하였다.

【0077】이때, 상기 열팽창된 질석을 재적층 시 적층되는 질석층 수에 따른 열전도도를 측정하고 그 결과를 도 7에 나타내었다. 도 7에 나타낸 바와 같이, 적층되는 질석층 수를 2, 4, 8장으로 달리한 결과 2장, 8장, 4장 순으로 열전도도가 낮게 나타났다.



## 【0078】 【표 1】

양이온	수화 직경(Å)	평균 면간거리 (d-spacing, Å)	평균 층간거리 (interlayer spacing, Å)
K <sup>+</sup>	6.6	10.7	4.7
Li <sup>+</sup>	6.8	11.6	5.6
Na <sup>+</sup>	7.1	12.0	6.0
Cu <sup>2+</sup>	6.6	11.8	5.8
Ni <sup>2+</sup>	6.7	11.9	5.9
Co <sup>2+</sup>	8.4	14.0	8.0
Zn <sup>2+</sup>	8.4	14.0	8.0
Mg <sup>2+</sup>	8.4	14.3	8.3
Sn <sup>2+</sup>	9.3	14.4	8.4
Ca <sup>2+</sup>	8.6	14.6	8.6
Al <sup>3+</sup>	9.5	13.8	7.8
Fe <sup>3+</sup>	9.6	13.6	7.6

【0079】 또한 치환된 양이온에 따른 질석 적층막의 평균 면간거리 및 평균 층간거리를 측정하고, 그 결과를 도 8에 나타내었다. 상기 표 1 및 도 8에 나타난 바와 같이, 양이온의 수화 직경에 따라 질석 적층막의 평균 면간거리 및 평균 층간거리가 각각 다르게 증가함을 확인할 수 있었다.

【0080】 또한, 상기 제조한 Li<sup>+</sup>로 치환된 질석 적층막을 Ca<sup>2+</sup>로 다시 치환하여 Ca<sup>2+</sup>로 치환된 질석 적층막을 제조하고, 도 9에 나타내었다. 질석층 내부의 양이온을 Li<sup>+</sup>에서 다시 Ca<sup>2+</sup>로 치환한 결과 질석 적층막의 평균 면간거리와 평균 층간거리가 각각 약 0.3 Å 정도 증가함을 확인할 수 있었다.

【0081】 이 같은 결과를 통해, 질석 적층막 내부에 치환되는 양이온의 종류에 따라 질석 적층막의 층간거리를 제어할 수 있음을 알 수 있었다.

【0082】 또한 상기  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막과, 상기  $\text{Li}^+$ 를  $\text{Ca}^{2+}$ 로 다시 치환한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 이용하여 질석 적층막 두께에 따른 열전도도를 측정하고 그 결과를 도 10에 나타내었으며, 층간 양이온에 따른 질석 적층막의 기계적 경도 및 영률을 측정하고, 그 결과를 하기 표 2 및 도 11에 나타내었다.

【0083】 기계적 강도는 하기 식 1에 의해 계산하였고, 영률(Young's modulus)은 하기 식 2에 의해 계산하였다.

【0084】 [식 1]

【0085】 기계적 경도:  $H = P_{\max} / A_p$

【0086】 [식 2]

【0087】 영률:  $E = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{S}{\sqrt{A_p}}$

【0088】 상기 식 1 및 식 2에서,  $P_{\max}$ 는 최대 하중을,  $A_p$ 는 투영된 접촉 면적을,  $S$ 는 강성을 의미한다.

【0089】 【표 2】

구분	기계적 경도 (MPa)	영률 (MPa)
$\text{Li}^+$ 치환 질석 적층막(Li-VMT)	74	1472
$\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막(Ca-VMT)	121	3808

【0090】 도 10에 나타난 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막 모두 질석 적층막의 두께에 비례하여 열전도도가 다소 증가하는 경향을 나타내었으며,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 경우  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막과 대비하여 열전도

도가 더 낮게 나타남을 확인할 수 있었다. 또한 도 11 및 상기 표 2에 나타낸 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 경우  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막과 대비하여 기계적 경도와 영률이 현저히 향상되었음을 확인할 수 있었다.

【0091】 따라서, 질석 적층막 내부의 양이온을  $\text{Ca}^{2+}$ 로 치환할 경우  $\text{Li}^+$ 로 치환할 경우와 대비하여 질석 적층막의 저열전도도 특성, 기계적 경도 및 영률을 더 향상시킬 수 있을 것임을 알 수 있었으며, 이 같은 결과를 통해 질석 적층막 내부에 치환되는 양이온의 종류에 따라 열전도도, 기계적 경도, 영률 등의 물성을 제어할 수 있을 것임을 알 수 있었다.

#### 【0092】 제조예 2. 열팽창된 $\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막 제조

【0093】 상기 제조예 1에서  $\text{Ca}^{2+}$ 로 치환된 질석 적층막을  $800^\circ\text{C}$ 에서 15초 간 노출시켜 열팽창시켜 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 제조하였다.

【0094】 상기 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 도 12에 나타내었고,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 열전도도를 측정하고 그 결과를 도 13에 나타내었다. 또한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 기공분포를 측정하고 그 결과를 도 14에 나타내었다.

【0095】 도 13에 나타낸 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 열팽창한 경우  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막과 대비하여 열전도도가 더 낮게 나타남을 확인할 수 있었으며, 이 같은 결과를 통하여 열팽창 시 양이온 치환 질석 적층막의 열전도도를 더욱 낮출 수 있음을 알 수 있었다. 또한 도 14에 나타낸 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적

층막을 열팽창한 경우 기공율이 증가하는 경향을 나타냄을 확인할 수 있었으며, 열 팽창 시 이 같은 기공율 증가를 통해 열전도도를 더욱 낮출 수 있음을 알 수 있었다.

【0096】 또한 상기 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 SEM 이미지와 FT-IR 분석 결과를 도 15 및 도 16에 나타내었다.

【0097】 도 15에 나타난 SEM 이미지와 같이, 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막의 단면은 내부 양이온의 치환으로 층간에 수십 나노 사이즈의 갭이 형성되고, 열 팽창으로 인해 그 이상으로 팽창되어 있음을 확인할 수 있었다. 또한 도 16에 나타난 FT-IR 분석 결과와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 열팽창한 경우 질석 적층막의 물질이나 결합의 변화 없이 층간거리를 넓혀 저열전도도를 확보할 수 있음을 알 수 있었다.

#### 【0098】 제조예 3. $\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막 포함 단열재 제조

【0099】 도 17에 도시한 바와 같이, TEOS(tetraethyl orthosilicate)와 메탄올 및 물을 1:2.25:0.35의 중량비로 혼합하여 실리카졸을 제조하였다. 상기 제조한 실리카졸에 상기 제조예 1에서 제조한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 10분간 함침시킨 후 (도 17의 (a)), 염기 촉매 용액(에탄올:암모니아수=210:1의 중량비)을 가하여 겔화를 유도하였다(도 17의 (b)). 상기 겔화 완료 후 초임계 건조하여(도 17의 (c))  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재를 제조하였다.  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재는 도 18에 나타내었다.

【0100】 상기 제조한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와,  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막 포함 단열재를 이용하여 질석 적층막 두께에 따른 열전도도를 측정하고, 그 결과를 도 19에 나타내었다.

【0101】 도 19에 나타낸 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 경우 질석 적층막의 두께와 비례하게 저열전도도 특성을 나타내며 반하여,  $\text{Li}^+$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 경우에는 일정수준의 두께에서는 열전도도의 변화가 거의 나타나지 않다가, 약  $750\ \mu\text{m}$  정도의 두께부터 열전도도가 증가하는 경향을 나타내었다. 이 같은 결과를 통하여, 양이온 치환 질석 적층막의 두께를 조절하여 열전도도를 낮출 수 있을 것임을 알 수 있었다.

#### 【0102】 제조예 4. 진공함침한 $\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막 포함 단열재 제조

【0103】 상기 제조예 3에서 실리카졸에  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 함침 시 0.10 MPa에서 10 분간 진공 함침시킨 것을 제외하고는 상기 제조예 3과 동일한 방법으로 실시하여  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재 제조하였다(도 18).

#### 【0104】 제조예 5. 열팽창된 $\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막 포함 단열재 제조

【0105】 도 20에 도시한 바와 같이, TEOS(tetraethyl orthosilicate)와 메탄올 및 물을 1:2.25:0.35의 중량비로 혼합하여 실리카졸을 제조하였다. 상기 제조한 실리카졸에 상기 제조예 2에서 제조한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 10분간 함침시킨 후(도 20의 (a)), 염기 촉매 용액(에탄올:암모니아수=210:1의 중량비)을 가하여 겔화를 유도하였다(도 20의 (b)). 상기 겔화 완료 후 초임계 건조하여(도 20

의 (c)) 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재를 제조하였다. 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재는 도 21에 나타내었다.

【0106】 상기 제조한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 부피분율(volume fraction)에 따른 열전도도를 측정하고, 그 결과를 도 22에 나타내었다. 도 22에 나타낸 바와 같이, 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막(Stacked TS Ca-VMT)의 부피분율에 따른 열전도도와 대비하여 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 70~98 부피%로 포함하는 단열재의 열전도도가 더 낮게 나타남을 확인할 수 있었다.

#### 【0107】 제조예 6. 진공함침한 $\text{Ca}^{2+}$ 치환 질석 적층막 포함 단열재 제조

【0108】 상기 제조예 5에서 실리카졸에 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 함침시 0.10 MPa에서 10 분간 진공 함침시킨 것을 제외하고는 상기 제조예 5와 동일한 방법으로 실시하여 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재 제조하였다(도 21).

【0109】 상기 제조한 진공함침한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 단면 SEM 사진을 도 23에 나타내었다. 도 23에 나타낸 바와 같이, 일반 팽창 질석을 포함하는 에어로겔의 단면은 조밀하게 적층된 구조이나, 본 개시에 따른 진공함침한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재 단면은 수십 나노 사이즈의 갭이 형성되고, 그 이상으로 팽창되어 있음을 확인할 수 있었다.

【0110】 또한 상기 제조예 3 및 4에서 제조한  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재와, 상기 제조예 5 및 6에서 제조한 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막 포함 단열재의 열전도도를 측정하고, 그 결과를 도 24에 나타내었다.

【0111】 도 24에 나타낸 바와 같이,  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 포함하여 단열재를 제조할 경우와 비교하여 진공함침하여 단열재를 제조하거나, 열팽창된  $\text{Ca}^{2+}$  치환 질석 적층막을 사용하여 단열재를 제조할 경우 열전도도를 더욱 낮출 수 있음을 확인할 수 있었다.

【0112】 이 같은 결과로부터, 본 개시에 따라 양이온 치환 질석 적층막을 이용하여 단열재의 제조 시 열팽창을 더 실시하거나, 단열재 제조 시 진공함침하여 제조할 경우 단열재의 열전도도를 낮추어 저열전도도 특성을 갖는 단열재를 제조할 수 있음을 알 수 있었다.

【0113】 일 실시예에 따른 단열재는, 질석이 박리 재적층된 질석 적층막 및 에어로겔을 포함하며, 상기 질석 적층막은 평균 30 nm 이하 두께의 질석이 재적층되고, 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것을 포함한다.

【0114】 또한 상기 질석 적층막은 평균직경이 100 nm 내지 90  $\mu\text{m}$ 인 질석을 포함할 수 있다.

【0115】 또한 상기 질석 적층막은 평균 층간거리가 1 내지 9 Å인 것을 포함할 수 있다.

【0116】 또한 상기 양이온은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.

【0117】 또한 상기 내부의 양이온이 치환된 질석 적층막은 평균 면간거리(d-spacing)가 10 Å 내지 15 Å 이고, 평균 층간거리(interlayer spacing)가 4 Å 내지 10 Å인 것을 포함할 수 있다.

【0118】 또한 상기 질석 적층막은 열팽창된 것을 포함할 수 있다.

【0119】 또한 상기 열팽창된 적층막은 평균 층간거리(interlayer spacing)가 200 nm 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것을 포함할 수 있다.

【0120】 또한 상기 질석 적층막은 평균 두께가 100  $\mu\text{m}$  내지 800  $\mu\text{m}$ 인 것을 포함할 수 있다.

【0121】 또한 상기 질석 적층막은 수직(out of plane) 열전도도 특성을 가질 수 있다.

【0122】 또한 상기 질석 적층막은 열전도도가 34  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$  내지 44  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$ 인 것을 포함할 수 있다.

【0123】 또한 상기 단열재는 질석이 적층 조립된 질석 적층막 70 부피% 내지 98 부피% 및 에어로겔 2 부피% 내지 30부피%를 포함할 수 있다.

【0124】 또한 상기 단열재는 열전도도가 20  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$  내지 35  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$ 인 것을 포함할 수 있다.



【0125】 일실시예에 따른 단열재의 제조방법은, 질석을 박리 재적층하여 질석 적층막을 제조하고, 상기 질석 적층막 내부의 양이온을 치환하고, 상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 에어로겔 졸을 장입하고, 상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 장입된 에어로겔 졸을 겔화시키는 것,을 포함한다.

【0126】 또한 상기 양이온은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.

【0127】 또한 상기 양이온이 치환된 적층막은 열팽창하는 것,을 더 포함할 수 있다.

【0128】 또한 상기 열팽창은  $800^{\circ}\text{C}$  이상의 온도에서 15초 이하로 가열하는 것을 포함할 수 있다.

【0129】 또한 상기 에어로겔 졸은 진공 함침(vacuum impregnation)하여 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 장입되는 것을 포함할 수 있다.

【0130】 또한 상기 진공 함침은 0.05 MPa 내지 0.10 MPa에서 5 분 내지 15 분 동안 유지하는 것을 포함할 수 있다.

【0131】 이상으로, 일 실시예에 따른 단열재 및 그 제조방법에 대해 설명하였다.

【0132】 본 개시의 사상에 따르면, 질석 적층막을 포함하여 기계적 강성이 우수하고, 에어로겔 단일체와 비교하여 경도 및 영률이 크게 향상되어 기계적 강도가 우수하며, 열전달체에 대해 수직(out of plane) 열전도도 특성을 가져 열전도도

를 낮출 수 있으며, 양이온 치환되거나 열팽창으로 층간거리를 넓힘으로써 보다 많은 에어로겔의 장입이 가능하여 단열 성능이 우수한 단열재 및 그 제조방법을 제공할 수 있다.

【0133】 본 개시에서 얻을 수 있는 효과는 이상에서 언급한 효과들로 제한되지 않으며, 언급하지 않은 또 다른 효과들은 아래의 기재로부터 본 개시가 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

【0134】 이상으로 개시된 발명의 실시예에 대하여 도시하고 설명하였지만, 개시된 발명은 상술한 특징의 실시예에 한정되지 아니하며 청구범위에서 청구하는 요지를 벗어남 없이 개시된 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 다양한 변형실시가 가능할 수 있다.

**【청구범위】****【청구항 1】**

질석을 박리 재적한 질석 적층막 및 에어로겔을 포함하며,

상기 질석 적층막은 평균 30 nm 이하 두께의 질석이 재적층되고, 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 2】**

제1항에 있어서,

상기 질석 적층막은 평균직경이 100 nm 내지 90  $\mu\text{m}$ 인 질석을 포함하는, 단열재.

**【청구항 3】**

제1항에 있어서,

상기 양이온은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상을 포함하는, 단열재.

**【청구항 4】**

제1항에 있어서,

상기 내부의 양이온이 치환된 질석 적층막은 평균 면간거리(d-spacing)가 10 Å 내지 15 Å이고, 평균 층간거리(interlayer spacing)가 4 Å 내지 10 Å인 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 5】**

제1항에 있어서,

상기 질석 적층막은 열팽창된 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 6】**

제5항에 있어서,

상기 열팽창된 적층막은 평균 층간거리(interlayer spacing)가 200 nm 내지 100  $\mu\text{m}$ 인 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 7】**

제1항에 있어서,

상기 질석 적층막은 평균 두께가 100  $\mu\text{m}$  내지 800  $\mu\text{m}$ 인 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 8】**

제1항에 있어서,

상기 질석 적층막은 수직(out of plane) 열전도도 특성을 가지는, 단열재.

**【청구항 9】**

제1항에 있어서,

상기 질석 적층막은 열전도도가 34  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$  내지 44  $\text{mW/m} \cdot \text{K}$ 인 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 10】**

제1항에 있어서,

상기 단열재는 질석이 적층 조립된 질석 적층막 70 부피% 내지 98 부피% 및 에어로겔 2 부피% 내지 30부피%를 포함하는, 단열재.

**【청구항 11】**

제1항에 있어서,

상기 단열재는 열전도도가 20 mW/m·K 내지 35 mW/m·K인 것을 포함하는, 단열재.

**【청구항 12】**

질석을 박리 재적층하여 질석 적층막을 제조하고,

상기 질석 적층막 내부의 양이온을 치환하고,

상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 에어로겔 졸을 장입하고,

상기 양이온이 치환된 질석 적층막의 층간에 장입된 에어로겔 졸을 겔화시키는 것,을 포함하는 단열재의 제조방법.

**【청구항 13】**

제12항에 있어서,

상기 양이온은  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Li}^{+}$ ,  $\text{K}^{+}$ ,  $\text{Na}^{+}$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$  및  $\text{Cu}^{2+}$  중 선택된 하나 이상을 포함하는, 단열재의 제조방법.

**【청구항 14】**

제12항에 있어서,

상기 양이온이 치환된 적층막은 열팽창하는 것,을 더 포함하는, 단열재의 제조방법.

**【청구항 15】**

제14항에 있어서,

상기 열팽창은 800℃ 이상의 온도에서 15초 이하로 가열하는 것을 포함하는, 단열재의 제조방법.

**【청구항 16】**

제12항에 있어서,

상기 에어로겔 줄은 진공 함침(vacuum impregnation)하여 상기 양이온이 치환된 적층막의 층간에 장입되는 것을 포함하는, 단열재의 제조방법.

**【청구항 17】**

제16항에 있어서,

상기 진공 함침은 0.05 MPa 내지 0.10 MPa에서 5 분 내지 15 분 동안 유지하는 것을 포함하는, 단열재의 제조방법.

**【요약서】****【요약】**

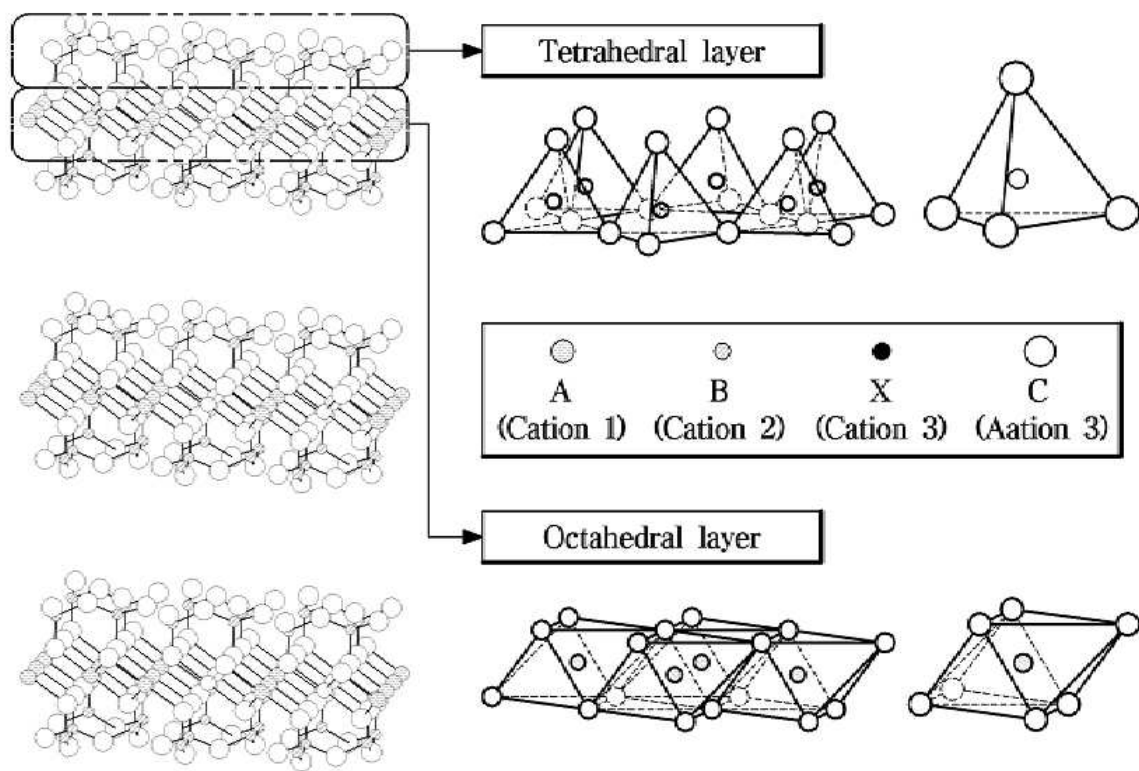
본 개시의 사상에 따른 하이브리드 에어로겔은, 질석이 박리 재적층된 질석 적층막 및 에어로겔을 포함하며, 상기 질석 적층막은 평균 30 nm 이하 두께의 질석이 재적층되고, 상기 적층막 내부의 양이온이 치환된 것을 포함한다.

**【대표도】**

도 6

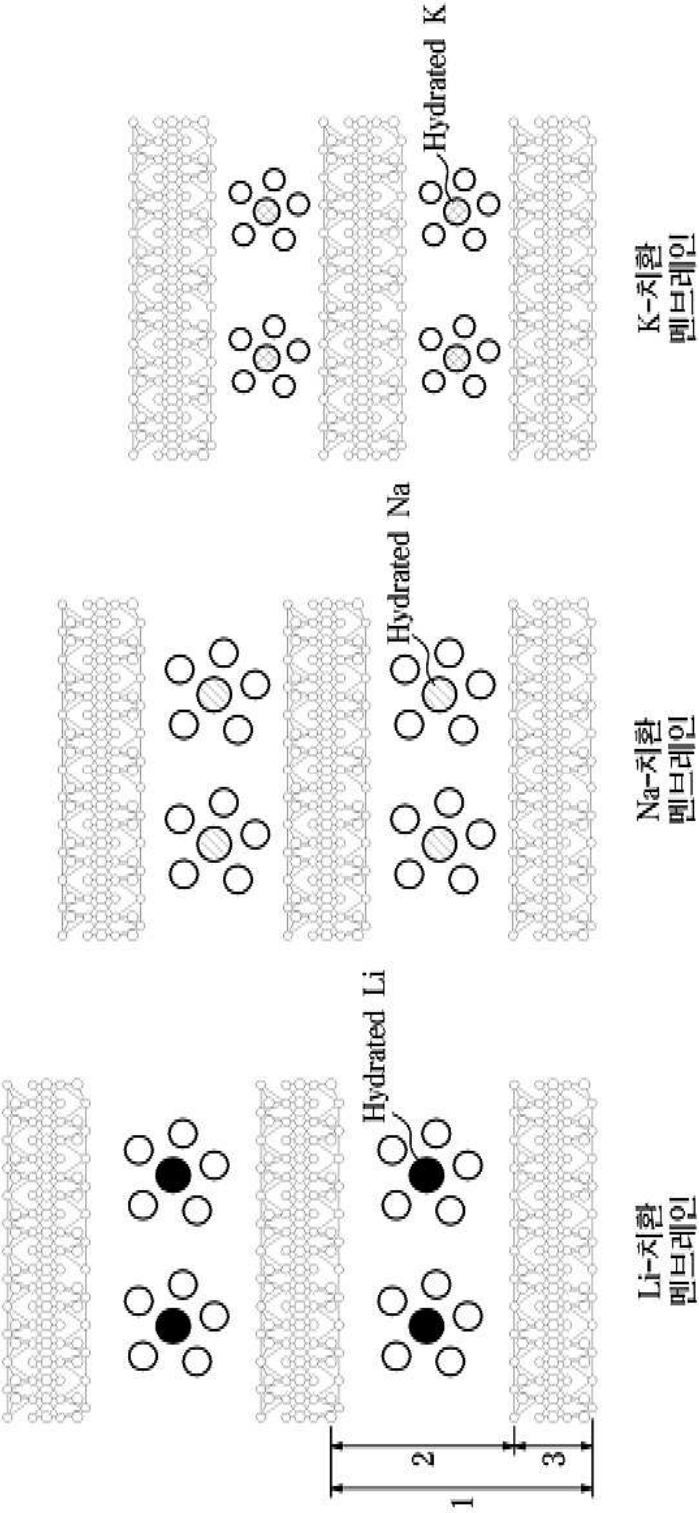
【도면】

【도 1】

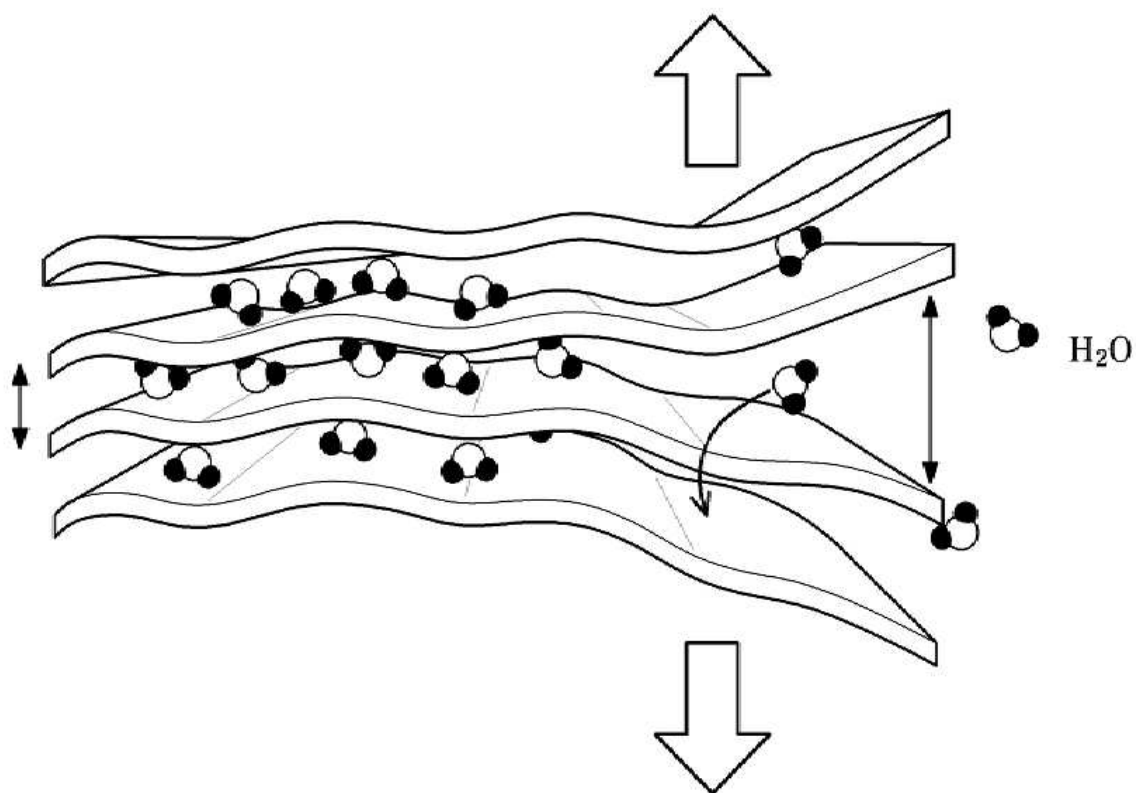




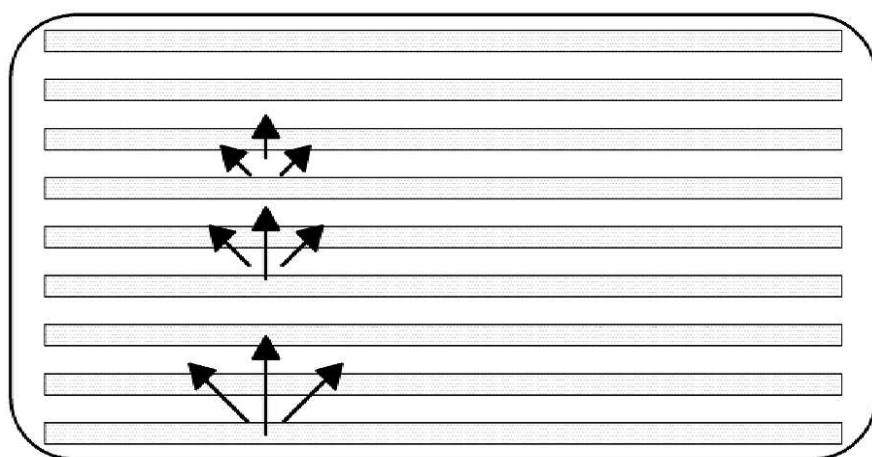
【도 2】



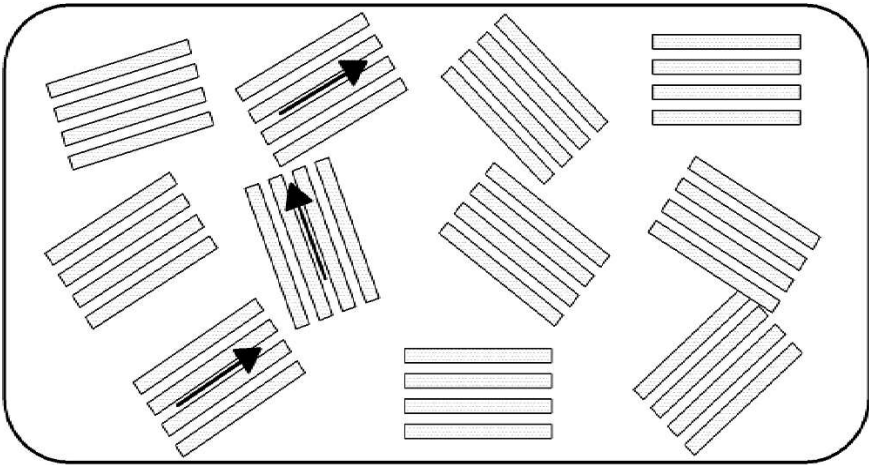
【도 3】



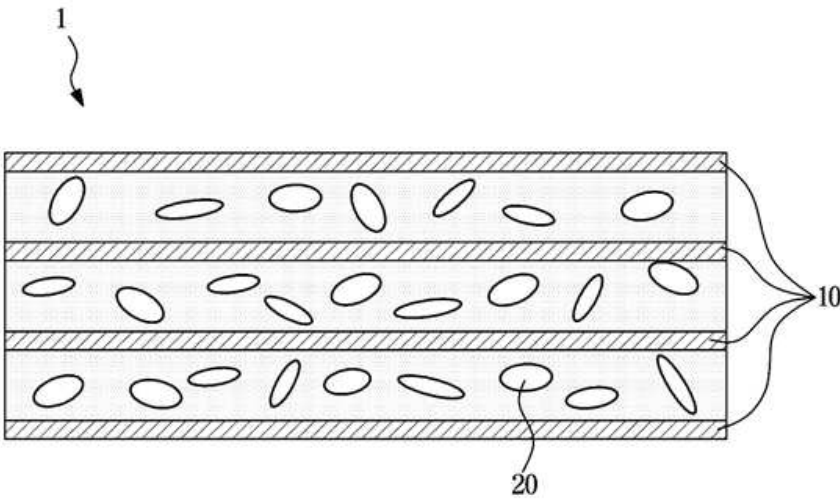
【도 4】



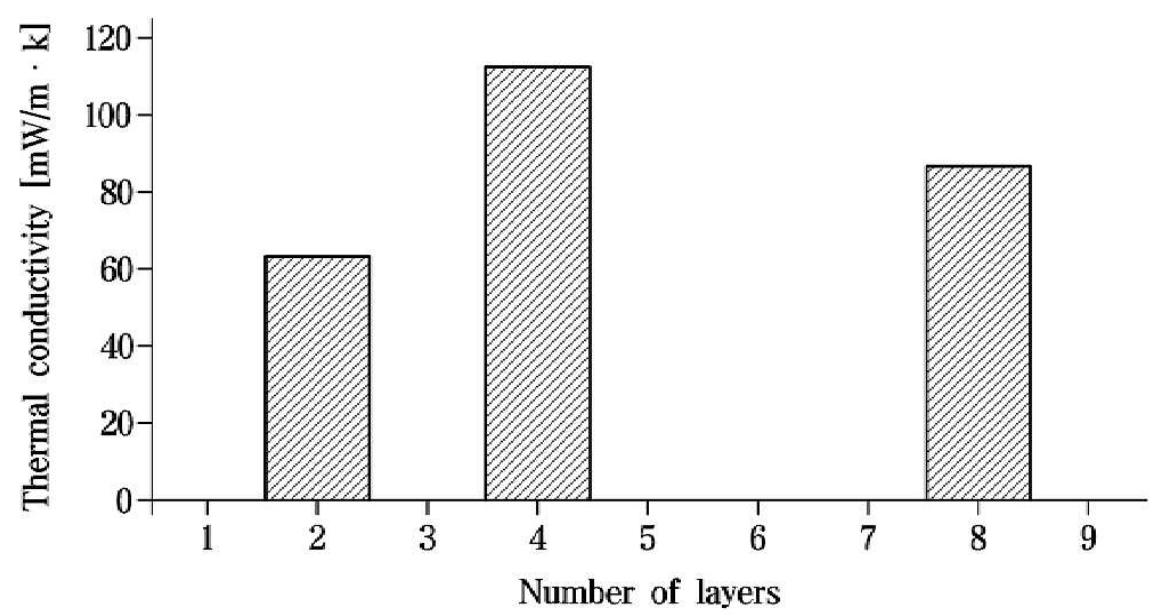
【도 5】



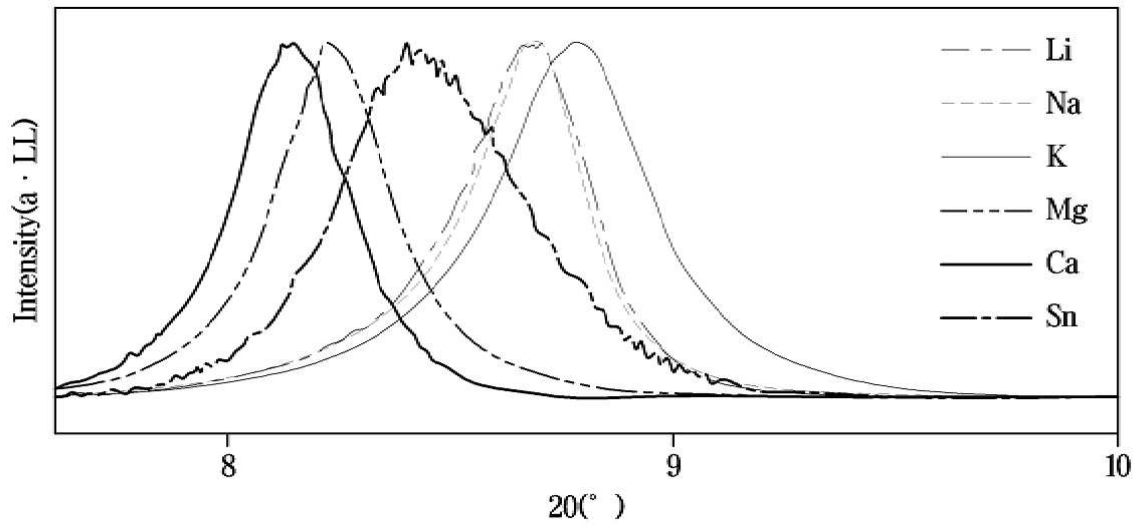
【도 6】



【図 7】



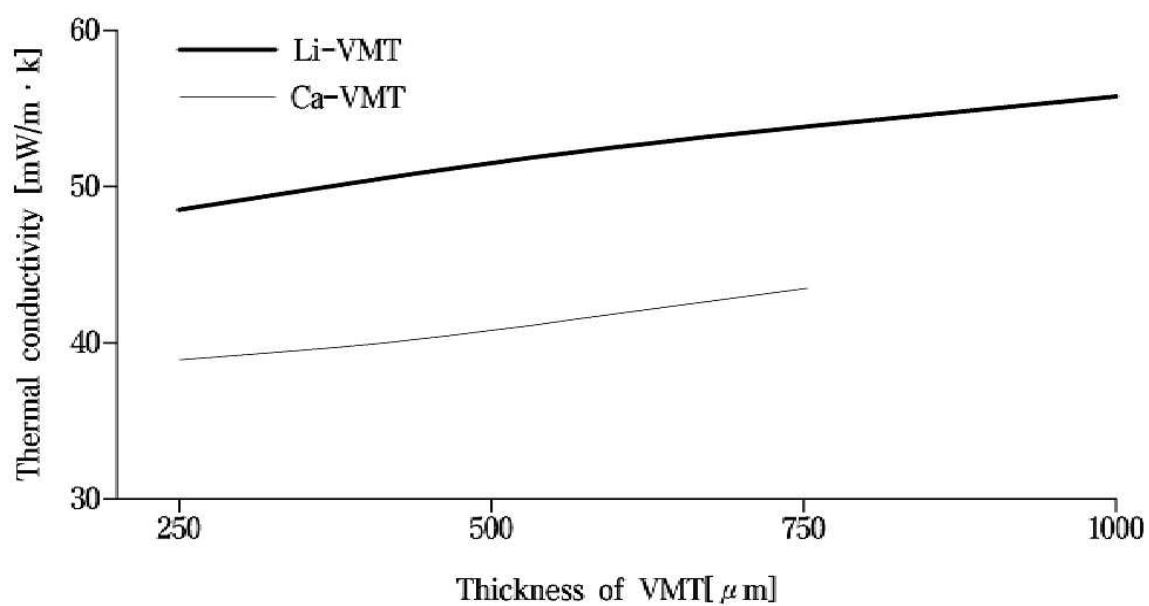
【図 8】



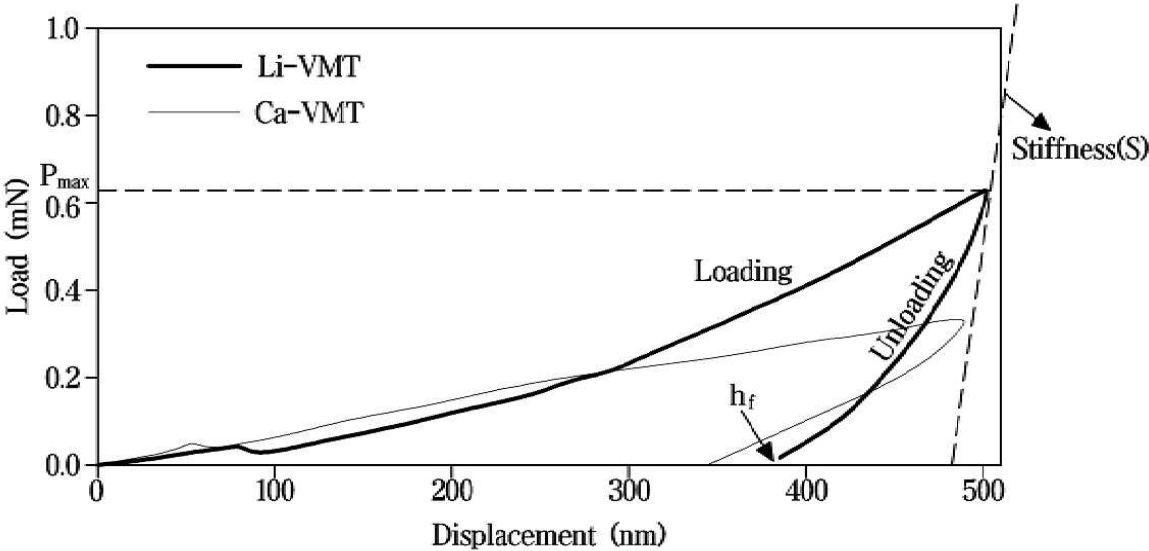
【도 9】



【도 10】



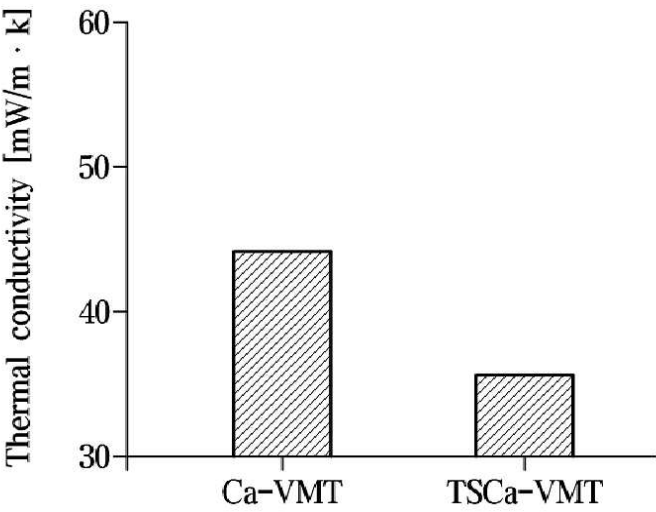
【도 11】



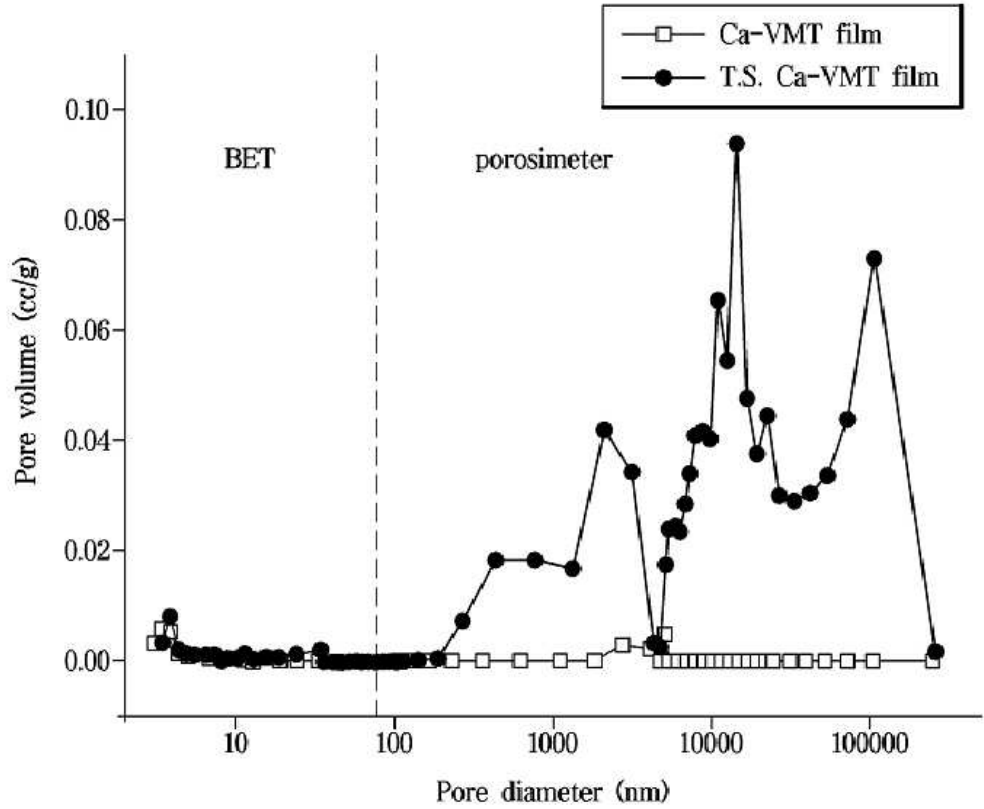
【도 12】



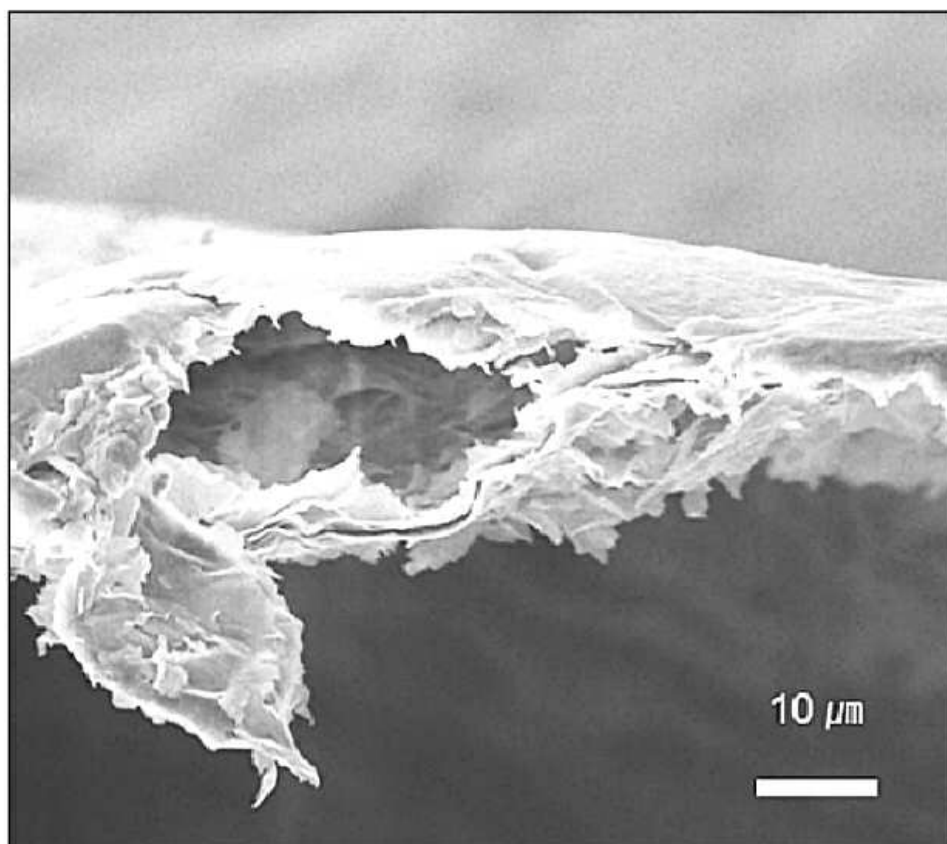
【도 13】



【도 14】

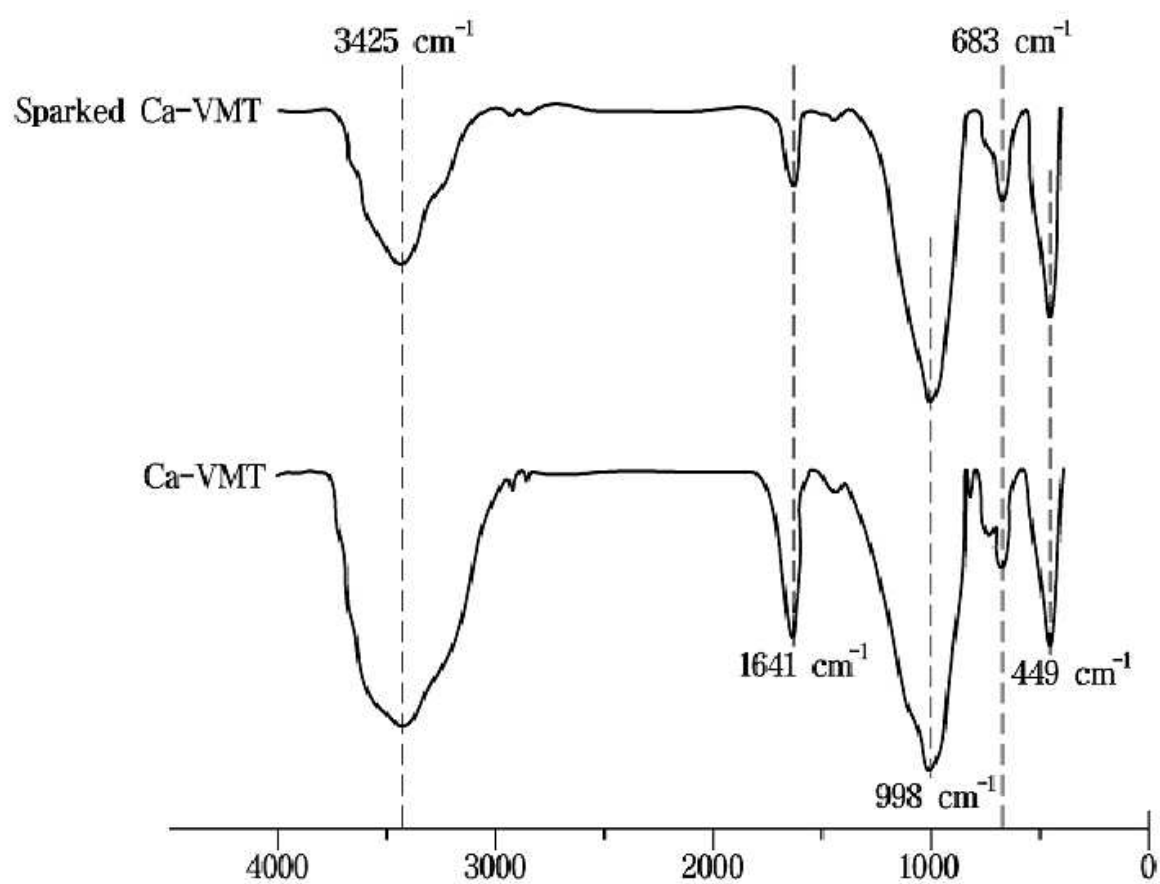


【도 15】

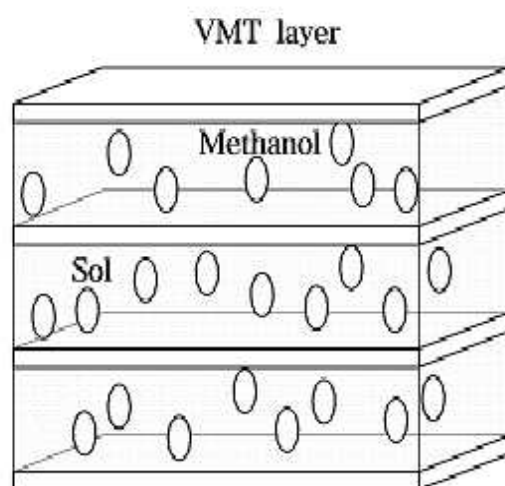




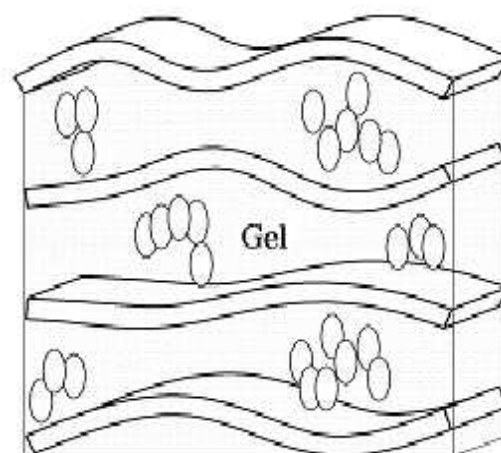
【도 16】



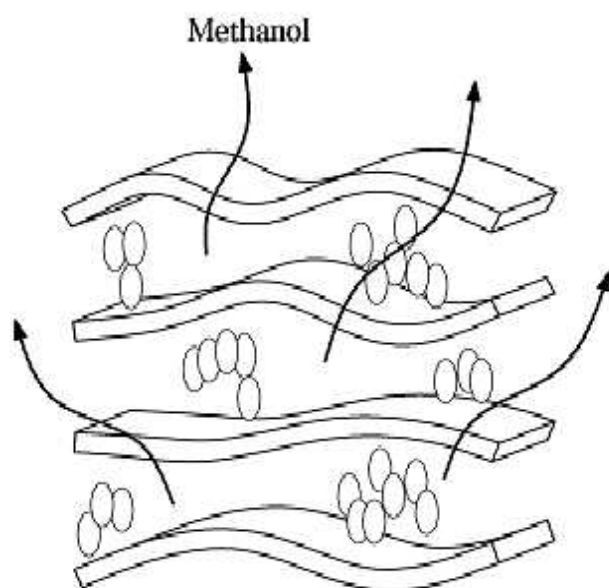
## 【도 17】



(a)

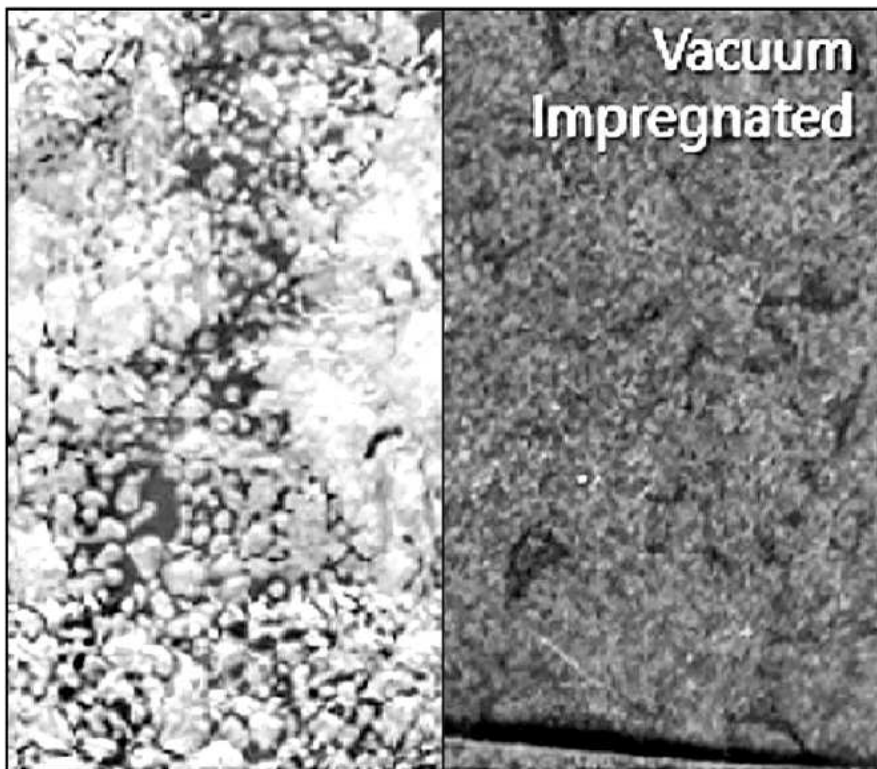


(b)

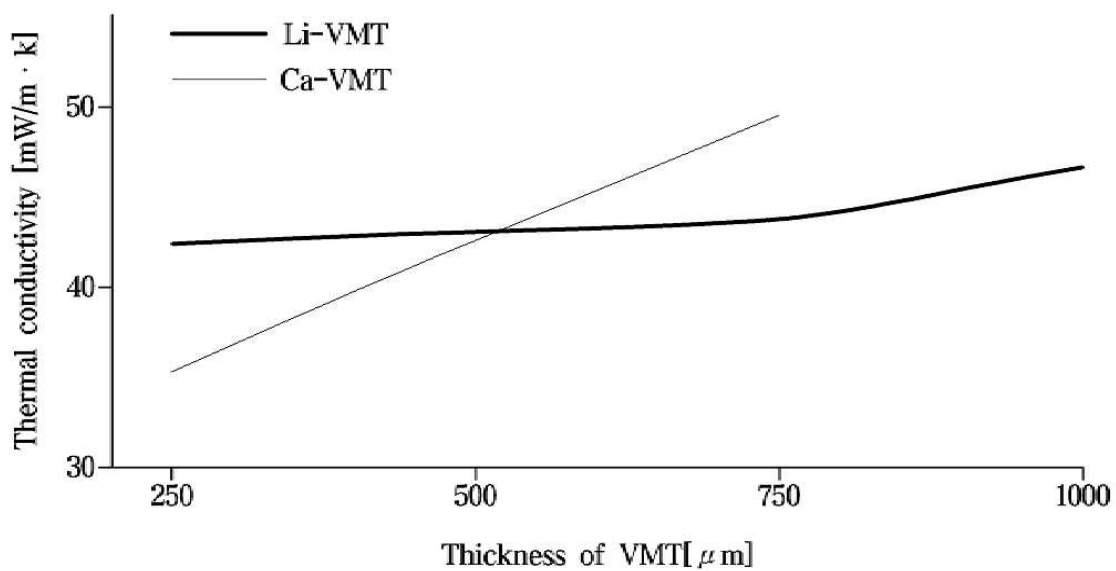


(c)

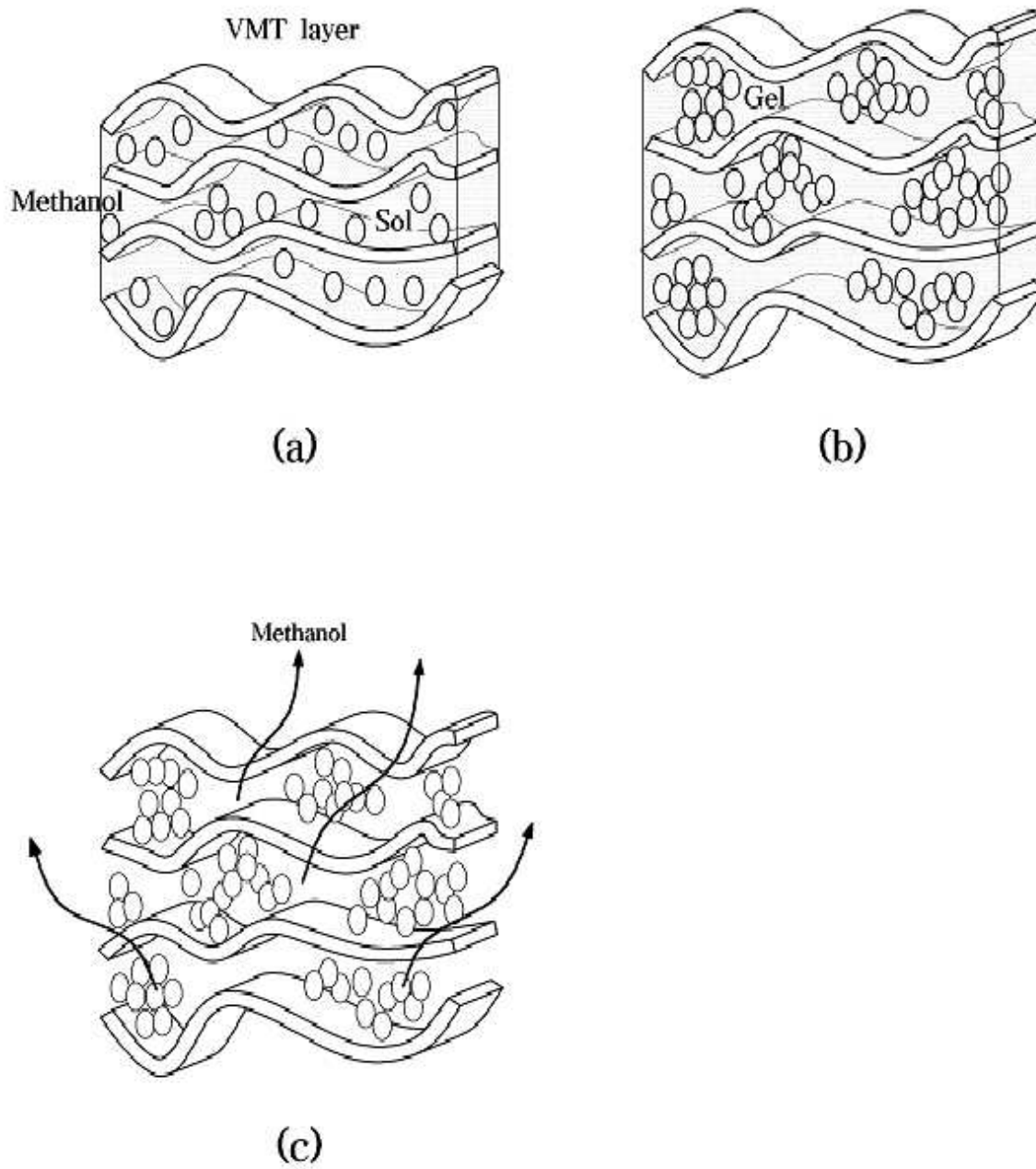
【도 18】



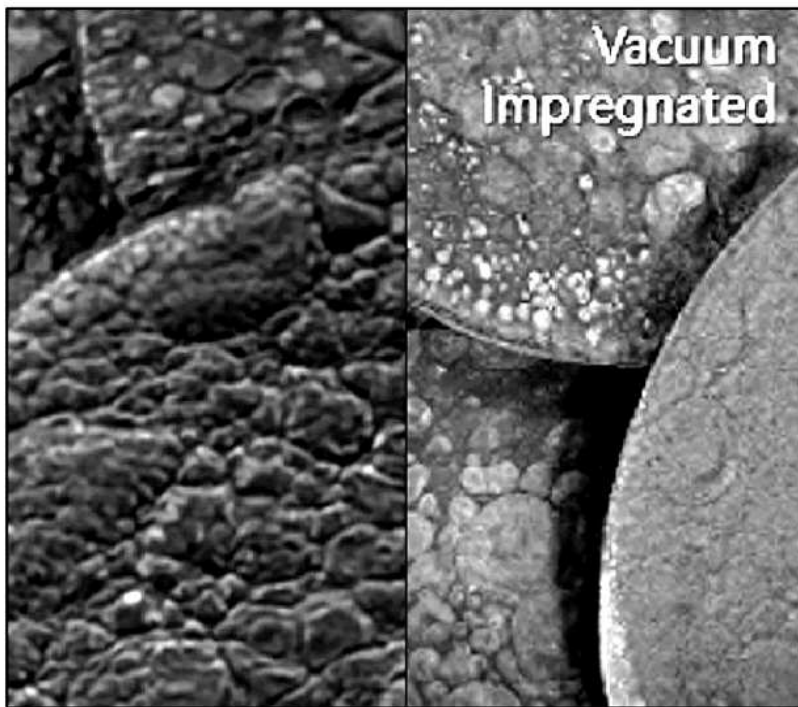
【도 19】



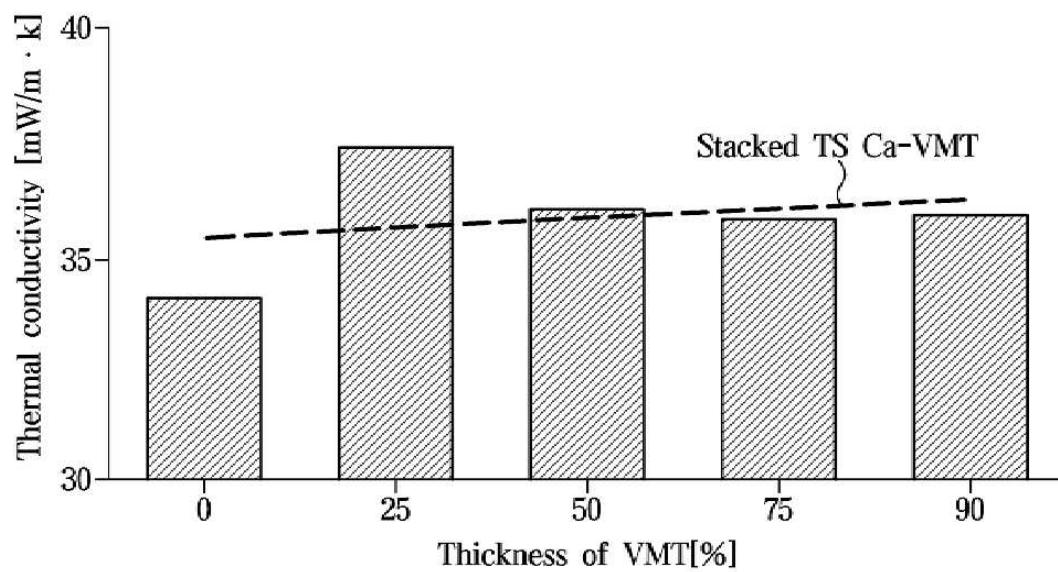
## 【도 20】



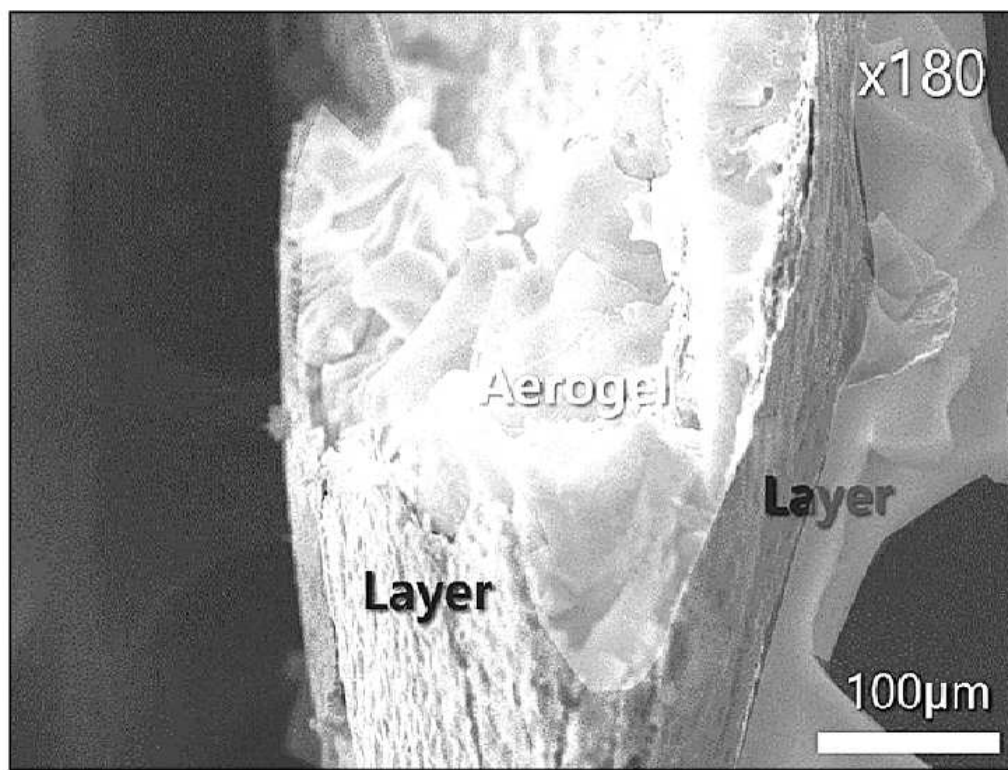
【도 21】



【도 22】



【도 23】



【도 24】

