

(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>  
B01J 13/00

(45) 공고일자 2004년05월07일

(11) 등록번호 10-0404401

(24) 등록일자 2003년10월23일

(21) 출원번호	10-1997-0704017	(65) 공개번호	10-1998-0700121
(22) 출원일자	1997년06월14일	(43) 공개일자	1998년03월30일
번역문제출일자	1997년06월14일		
(86) 국제출원번호	PCT/US1995/016196	(87) 국제공개번호	WO 1996/18456
(86) 국제출원일자	1995년12월14일	(87) 국제공개일자	1996년06월20일
(81) 지정국	국내특허 : 오스트레일리아 바베이도스 불가리아 브라질 캐나다 중국 체코 그루지야 헝가리 일본 북한 대한민국 스리랑카 리투아니아 라 트비아 마다가스카르 몽고 노르웨이 뉴질랜드 폴란드 루마니아 슬로 베니아 슬로바키아 트리니다드토바고 우크라이나 AP ARIPO특허 : 케냐 말라위 수단 EA 유라시아특허 : 아르메니아 벨라루스 키르기즈 카자흐스탄 몰도바 러시아 타지키스탄 EP 유럽특허 : 오스트리아 스위스 리히텐슈타인 독일 덴마크 스페인 핀란드 영국 룩셈부르크 포르투갈 스웨덴 OA OAPI특허 : 부르키나파소 베냉 중앙아프리카 콩고 코트디부와르 카 메룬 가봉 기네 말리 모리타니 니제르 세네갈 차드 토고		

(30) 우선권주장 08/356849 1994년12월15일 미국(US)

(73) 특허권자 캐보트 코포레이션

(72) 발명자 미합중국 매사추세츠 02210-2019 보스턴, 스위트 1300, 투 씨포트 라인  
보스, 할프, 올리치

미국 01742 매사추세츠주 웨스트 콘코드 하이랜드 스트리트 31  
벨몬트, 제임스, 에이.

미국 01720 매사추세츠주 액톤 코난트 스트리트 8  
카울, 데이비드, 제이.

미국 01720 매사추세츠주 액톤 윈드클리프 로드 13  
스미스, 더글라스, 엠.

미국 87106 뉴멕시코주 알부케르크 마켓 플레이스엔이 1412  
아커만, 윌리엄, 씨.

(74) 대리인 미국 87120 뉴멕시코주 알부케르크 콕타운 트레일 엔더블유 4809  
김영, 주성민

**심사관 : 좌승관**

**(54) 탄소질 화합물을 함유하는 겔 조성물**

**명세서**

**기술분야**

<1> 본 발명은 새로운 겔 조성물에 관한 것이다.

**배경기술**

<2> 겔과 이들의 제조방법은 잘 알려져있다. 여기에서 사용하고 있는 것과 같이 용어 "겔"은 에어로 겔, 크세로겔(다공성 건조겔), 히드로겔 및 당업계에서 잘 알려진 다른 겔들을 포함한다. 용어 "에어로겔"은 미국 특허 공보 제2,188,007호에서 에스.에스.키스틀러에 의해 만들어졌으며 초임계 온도/압력 하에서 건조된 겔을 의미하는 것으로 통용되고 있다. 겔, 특히 에어로겔들은 단일 및 방음재, 촉매 지지체 및 운반체, 여과기 및 분자체 그리고 전자공학등을 포함하는 다양한 용도로 사용되고 있다.

<3> 낮은 벌크 밀도(bulk density)를 갖는 겔들이 많은 용도로 사용하기에 더 유용하다. 낮은 벌크 밀도때문에 에어로겔은 다양한 용도에 선택되는 겔로 될 수 있기 때문이다. 그러나 전술한 바와 같이 에어로겔은 일반적으로 초임계 상태에서 건조에 의해 생산되므로 비교적 고가의 제조 장치와 조건들을 사용하여야 한다.

<4> 높은 벌크 밀도를 가지는 겔을 흡착제와 같은 특정 용도로 사용하는 것도 잇점이 있다.

<5> [발명의 상세한 기술]

## &lt;6&gt; &lt;발명의 요약&gt;

<7> 본 발명은 지금까지 공지된 겔과 비교하여 개선된 성능 특성을 가진 새로운 겔 조성물을 제공한다. 본 발명의 겔 조성물은 겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 포함한다. 탄소질 성분은 겔 성분에 부착될 수 있는 카본 블랙, 카본 섬유, 활성 탄소 및 흑연 탄소를 이루어진 군에서 선택될 수 있다. 필요에 따라 탄소질 성분은 본 발명의 겔 조성물의 겔 성분에 부착될 수 있도록 변형될 수 있다. 바람직하게는 탄소질 성분이 화학적으로 변형된다.

<8> 또한, 본 발명은 겔 성분과 a) 적어도 하나의 방향족기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 이온화 가능기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고 유기기 중 적어도 하나의 방향족기가 카본 블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착 유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물을 포함한다. 카본블랙 제품의 제조방법에 관한 상세한 설명과 새로운 겔 조성물의 바람직한 실시태양은 하기 발명의 상세한 설명란에 언급한다.

<9> 또한, 본 발명은 겔 성분과, a) 적어도 하나의 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> 알킬기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 이온화 가능기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고 유기기 중 적어도 하나의 알킬기가 카본블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착 유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물을 포함한다. 카본블랙 제품의 제조방법에 관한 상세한 설명과 새로운 겔 조성물의 바람직한 실시태양은 하기의 발명의 상세한 설명란에 언급한다.

<10> 본 발명의 겔 조성물에 사용하기 적합한 겔 성분으로는 실리카겔, 이산화티탄겔, 알루미늄겔등과 같은 금속 산화물겔과 레조르시놀-포름알데히드(R-F)겔, 멜라민 포름알데히드(M-F)겔, 페놀-푸르푸랄(P-F)겔 등과 같은 중합체겔등이 있다. 바람직한 겔 성분은 금속 산화물겔이다.

<11> 겔 조성물에 함유되는 탄소질 성분의 양은 겔 조성물의 최종 사용 용도에 따라 결정될 것이다. 일반적으로, 탄소질 성분은 1-99중량%의 양으로 본 발명의 겔 조성물에 사용될 수 있다. 낮은 벌크 밀도를 갖는 겔 조성물을 제조하는 것이 바람직한 경우에는 탄소질 성분 1-50중량%, 바람직하게는 10-20중량%의 양이 본 발명의 겔조성물에 사용된다. 대신에, 높은 벌크 밀도를 갖는 겔 조성물을 제조하는 것이 바람직한 경우에는 탄소질 성분 50-99중량%, 바람직하게는 75-85중량%의 양이 본 발명의 겔 조성물에 사용된다. 여기에서 사용된 "벌크 밀도"는 겔 입자들의 질량을 입자들의 총부피로 나눈 것이다.

<12> 본 발명의 겔 조성물은 겔 조성물에 대해 당업자에게 알려진 많은 용도에 유리하게 사용될 수 있다. 특히, 본 발명의 겔 조성물은 다음과 같은 용도 즉, 단열, 전기 절연 및 방음, 예를들면 광택제거제, 증점제(thickener), 충전제 및 보강제를 포함하는 미립자형 첨가제, 흡착제, 촉매 지지체, 막, 여과기, 방사선 측정기, 내열 코팅제를 포함한 코팅제 및 낮은 K값의 유전체 등에 사용된다.

<13> 본 발명의 겔 조성물, 이의 제조방법 및 용도에 관한 더 상세한 설명은 하기 발명의 상세한 설명에 기재한다. 본 발명의 겔 조성물의 잇점은 하기한 발명의 상세한 설명을 통해 당업자들에게 명확해 질 것이다.

## &lt;14&gt; &lt;상세한설명&gt;

<15> 상기한 바와같이, 본 발명의 겔 조성물은 겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 포함하고 있습니다. 겔 성분에 부착된 특정 탄소질 성분을 설명하기 위하여 주사 전자현미경 사진(SEM)을 첨부하였다. 도1은 탄소질 성분을 함유하지 않은 겔 조성물의 단편 표면에 대한 주사 전자현미경(SEM) 사진이다. 도2는 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 함유하는 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진이다. 이와 대조적으로, 도3은 겔 성분에 부착된 탄소질성분을 함유하는 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진이다. 도1-3에 대한 더 상세한 설명과 나머지 도4-8의 설명은 이하의 실시예 부분에 기재한다.

<16> 또한, 탄소질성분이 겔 성분에 부착된 본 발명의 겔 조성물의 박리성(rub-off)은 탄소질성분이 겔 성분에 부착되지 않은 비교 겔 조성물의 박리성보다 낮다. 박리성에 관한 더 상세한 설명은 이하의 실시예 부분에 기재한다.

<17> 본 발명의 겔 조성물의 탄소질성분은 겔 성분에 부착 가능한 카본 블랙, 겔 성분에 부착 가능한 카본 섬유, 겔 성분에 부착 가능한 활성 탄소 및 겔 성분에 부착 가능한 흑연 탄소들로 이루어진 군에서 선택되어 진다. 특정 탄소질성분은 변형되지 않으면 겔 성분에 부착될 수 없다. 바람직하게는 탄소질성분은 다음과 같은 방법에 의하여 화학적으로 변형된다.

<18> 탄소질성분의 표면에 적어도 하나의 유기기를 부착하기 위하여 액체 반응 매질에서 탄소질성분을 디아조늄염과 반응시킴으로써 부착 능력을 가진 탄소질성분을 제조한다. 바람직한 반응 매질로는 물, 물을 함유하는 매질 및 알코올을 함유하는 매질들이 있다. 물이 가장 바람직한 매질이다. 변형된 탄소질성분과 이들을 제조하기 위한 여러 방법은 " 카본블랙의 디아조늄염과의 반응, 생성된 카본블랙 제품 및 그들의 용도"라는 명칭으로 본 발명의 출원일과 동일자인 1994년 12월 15일 출원되고 여기에 참고 문헌으로 포함된 미합중국 특허 출원에 기재되어 있다. 변형된 탄소질성분과 이들을 제조하기 위한 여러 방법은 또한 "탄소 물질의 디아조늄염과의 반응 및 생성된 탄소 제품" 이라는 명칭으로 본 발명의 출원일과 동일자인 1994년 12월 15일 출원되고 여기에 참고 문헌으로 포함된 미합중국 특허 출원에 기재되어 있다.

<19> 본 발명의 겔 조성물에 사용하기 위한 부착 능력을 가진 탄소질성분을 제조하는 방법은 탄소질성분으로써 카본블랙에 관한 아래 문단에 기재되어 있다. 유사한 방법을 카본블랙이 아닌 다른 부착 능력을 갖는 탄소질성분을 제조하는데 사용할 수 있다.

<20> 부착 능력을 갖는 카본블랙을 제조하기 위하여 디아조늄염은 카본블랙과 반응할 수 있을 정도로 충분히 안정하지만 하면 된다. 그러므로 다른 경우 불안정하거나 분해된다고 여겨지는 그 반응은 일부 디아조늄염으로 수행될 수 있다. 일부의 분해과정이 카본블랙과 디아조늄염과의 반응과 경험할 수 있으며 카본블랙에 부착되는 유기기의 총수를 줄일 수 있다. 게다가, 반응이 많은 디아조늄염이 분해되기 쉬운 상승된 온도에서 수행될 수 있다. 상승된 온도가 반응 매질중에서 디아조늄염의 용해도를 유리하게 증가

시키고 반응 진행 중 취급성을 향상시킬 수 있다. 그러나, 상승된 온도는 다른 분해과정에 의한 약간의 디아조늄염의 손실을 초래할 수 있다.

- <21> 카본블랙은 희석제로서 쉽게 교반되는 수용성 슬러리 또는 카본블랙 펠렛 생성에 적당한 양의 물 존재시 디아조늄과 반응할 수 있다. 필요한 경우 종래의 펠렛화 방법을 사용하여 카본블랙 펠렛을 만들 수도 있다.
- <22> 카본블랙에 부착 가능한 유기기의 바람직한 세트는 기능기로서 이온기 또는 이온화 가능기로 치환된 유기기들이다. 이온화 가능기란 사용 매질에서 이온기를 생성할 수 있는 기를 말한다. 이온기는 음이온성기 또는 양이온성기가 될 수 있고 이온화 가능기는 양이온 또는 음이온을 생성할 수 있다.
- <23> 음이온을 생성하는 이온화 가능 기능기에는 예를 들면, 산성기 또는 산성기의 염을 포함한다. 그러므로 유기기는 유기산에서 유래한 기를 포함한다. 바람직하게는, 유기기가 음이온을 생성하는 이온화 가능기를 함유한 경우, 그러한 유기기는 1) 방향족기 또는 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>의 알킬기와 2) pKa가 11 미만인 적어도 하나의 산성기, 또는 pKa가 11 미만인 적어도 하나의 산성기염, 또는 pKa가 11 미만인 적어도 하나의 산성기와 pKa가 11 미만인 적어도 하나의 산성기염의 혼합물을 가진다. 산성기의 pKa값은 단지 산성 치환기만이 아니라 전체유기기의 pKa값을 의미한다. 보다 바람직하게는 pKa가 10 미만인 것이고, 가장 바람직하게는 9 미만인 것이다. 바람직하게는 유기기의 방향족기 또는 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>의 알킬기가 카본블랙에 직접 부착되는 것이다. 방향족기는 예를들면, 알킬기로 더 치환이 될 수도 있고 치환되지 않을 수도 있다. C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>의 알킬기는 분쇄되거나 직쇄될 수 있으며, 바람직하게는 에틸이다. 보다 바람직하게는 유기기는 페닐 또는 나프틸기이고, 산성기는 술폰산기, 술폰산기, 포스포산기 또는 카르복실산기인 것이다. 예로서는 -COOH, -SO<sub>3</sub>H와 -PO<sub>3</sub>H<sub>2</sub> 그리고, 이들의 염, 예를 들면 -COONa, -COOK, -COO NR<sub>4</sub><sup>+</sup>, -SO<sub>3</sub>Na, HPO<sub>3</sub>Na, -SO<sub>3</sub>NR<sub>4</sub><sup>+</sup> 및 -PO<sub>3</sub>Na<sub>2</sub>을 포함한다(여기서, R은 알킬 또는 페닐기이다). 특히 바람직한 이온화 가능 치환기는 -COOH와 -SO<sub>3</sub>H 및 이들의 나트륨과 칼륨염들이다.
- <24> 가장 바람직하게는 유기기가 치환 또는 미치환된 술폰페닐기 또는 이들의 염, 치환 또는 미치환된 (폴리술폰)페닐기 또는 이들의 염, 치환 또는 미치환된 술폰나프틸기 또는 이들의 염, 치환 또는 미치환된 (폴리술폰)나프틸기 또는 이들의 염인 것이다. 바람직한 치환된 술폰페닐기는 히드록시술폰페닐기 또는 이들의 염이다. 음이온을 만드는 이온화 가능 기능기를 갖는 특정한 유기기는 p-술폰페닐, 4-히드록시-3-술폰페닐 및 2-술폰페닐이다.
- <25> 아민은 양이온을 만드는 이온화 가능 기능기의 예이며, 음이온을 만드는 이온화 가능 기능기에서 언급한 바와 같은 동일한 유기기에 부착될 수 있다. 예를들면, 아민은 산성 매질에서 양성자를 받아서 양모늄기가 된다. 바람직하게는, 아민 치환기를 갖는 유기기는 5 미만의 pKb의 값을 갖는다. 사차 양모늄기(-NR<sub>3</sub><sup>+</sup>)와 사차 포스포늄기(-PR<sub>3</sub><sup>+</sup>) 또한 양이온기의 예이며, 음이온을 만드는 이온화 가능 기능기에서 언급한 바와 같은 동일한 유기기에 부착될 수 있다. 바람직하게는, 유기기가 페닐 또는 나프틸기와 같은 방향족기 그리고 사차 양모늄 또는 사차 포스포늄기를 가지는 것이다. 방향족기는 바람직하게는 카본블랙에 직접 부착된다. 4차 고리형 아민과 4급 방향족 아민도 역시 유기기로서 사용될 수 있다. 그러므로, 이러한 점에서 N-메틸피리디닐과 같은 N-치환 피리디늄 성분이 사용될 수 있다.
- <26> 이온기 또는 이온화 가능기로 치환된 부착 유기기를 가지는 카본블랙 제품의 잇점은 대응되는 비처리된 카본블랙과 비교하여 수(水) 분산성이 증가한다는 것이다. 일반적으로 카본블랙 제품의 수 분산성은 카본블랙에 부착되어 있는 이온화 가능기를 가진 유기기의 수와 주어진 유기기에 부착된 이온화 가능기의 수에 따라 증가한다. 그러므로 카본블랙 제품에 부착되어 있는 이온화 가능기의 수의 증가는 제품의 수 분산성을 증가시키고, 요구되는 수준의 수 분산성으로 조절할 수 있게 한다. 카본블랙에 부착된 유기기로서 아민을 함유하는 카본블랙 제품의 수 분산성은 액상 매질을 산성화함으로써 증가될 수 있다고 말할 수 있다.
- <27> 물에 분산되고 부착능력을 가진 카본블랙 제품을 제조하는 경우 반응 매질에서 이온기 또는 이온화 가능기는 이온화되는 것이 바람직하다. 생성된 제품 용액 또는 슬러리는 그대로 또는 사용 전에 희석하여 사용할 수 있다. 또는, 카본블랙 제품은 종래의 카본블랙에 사용되는 기술에 의해 건조할 수 있다. 이들 기술로는 오븐 및 회전로에서의 건조등이 포함되지만, 이에 한정되는 것은 아니다. 그러나 과건조는 수 분산성 정도의 저하를 야기시킬 수 있다. 상기 카본블랙 제품이 수용성 부형제에서 요구되는 정도로 쉽게 분산되지 않을 경우, 카본블랙 제품은 밀링이나 분쇄와 같은 종래의 방법을 사용하여 분산될 수 있다.
- <28> 종래의 카본블랙 안료와 비교할 때, 화학적으로 변형된, 부착능력을 가진 카본블랙 제품이 액상 매질에서 분산되기는 어렵지 않다. 화학적으로 변형된, 부착능력을 가진 카본블랙 제품은 종래의 밀링과정을 반드시 필요로 하는 것은 아니며 사용하기에 적합한 분산 정도를 얻기 위하여 분산제를 반드시 필요로 하지도 않는다. 바람직하게는 화학적으로 변형된 부착능력을 가진 카본블랙 제품은 물에서 안료를 쉽게 분산시키기 위해서 단지 낮은 전단 교반 또는 혼합을 필요로 한다.
- <29> 부착능력을 갖는 카본블랙 제품으로부터 펠렛을 만드는 것은 종래의 습윤과정인 핀 펠렛화 방법을 통하여 바람직하게 실시된다. 생성된 펠렛은 분산제의 사용 또는 밀링의 필요성이 없거나 줄어들어 최소의 전단 교반 또는 혼합에 의해 물에 쉽게 분산된다.
- <30> 본 발명은 겔 성분과 a) 적어도 하나의 방향족기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 적어도 하나의 이온화 가능기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고, 유기기 중 적어도 하나의 방향족기가 카본블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착 유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물을 포함한다. 바람직하게는 이온기 또는 이온화 가능기는 카르복실산 또는 이들의 염, 술폰산 또는 이들의 염 및 사차 양모늄염들로 이루어진 군에서 선택된다. 바람직하기로는 유기기는 술폰페닐기 또는 이들의 염, p-술폰페닐 또는 이들의 염 및 카르복시페닐 또는 이들의 염들로 이루어진 군에서 선택된다. 부착능을 갖는 탄소질성분의 생성과 관련하여 본 발명의 겔 조성물의 여러 실시태양에 적합한 카본블랙

제품은 상기한 것과 같은 방법으로 제조될 수 있다.

- <31> 본 발명은 겔 성분과, a) 적어도 하나의 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> 알킬기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 이온화 가능 기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고 유기기 중의 적어도 하나의 알킬기가 카본블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착 유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물을 포함한다. 바람직하게는 이온기 또는 이온화 가능기는 에탄 술폰산 또는 이들의 염으로 이루어진 군에서 선택된다. 부착 능을 갖는 탄소성분의 생성과 관련하여 본 발명의 겔 조성물의 여러 실시태양에 적합한 카본블랙 제품은 상기한 것과 같은 방법으로 제조될 수 있다.
- <32> 본 발명의 겔 조성물은 겔 조성물의 제조를 위해 당업계에서 공지된 어느 과정에 의해서도 제조될 수 있다. 예를 들면 본 발명의 겔 조성물은 알콕시화물계에 관한 다음의 방법에 의해 제조될 수 있다.
- <33> 1) 요구되는 겔 성분의 전구체를(본 예에서는 알콕시화물) 알콜에 용해시키고
- <34> 2) 물에 대한 알콕시화물의 물비가 대략 10이 되도록 용액에 물을 첨가하고
- <35> 3) 산에 대한 물의 물비가 대략 1:0.0007이 되도록 생성 용액에 산을 첨가하여 졸을 만들고
- <36> 4) 졸에 탄소질 성분을 첨가하고
- <37> 5) 촉매(일반적으로 산 또는 염기)를 투입하여 졸의 젤라틴화를 개시하고
- <38> 6) 생성된 겔을 50°C에서 약 24시간 동안 주형에서 에이징(aging)시키고
- <39> 7) 생성된 겔을 물로 세척하여 용매 성분을 물로 치환시킨 후 이어서 겔을 상승된 온도(최고 100°C까지, 바람직하게는 약70°C)에서 최고 24시간까지 물에서 에이징시키고
- <40> 8) 용매내에서 에이징된 겔을 세척하여 물을 씻어내어 물을 용매로 치환시키고
- <41> 9) 생성된 겔을 건조시켜 본 발명의 겔 성분을 생성시킨다.
- <42> 본 발명의 겔 조성물에 사용하기에 적합한 겔 전구체는 이에 한정되는 것은 아니지만 다음과 같은 당업계에서 알려진 금속 산화물겔 전구체를 포함한다.

### 금속산화물

### 겔전구체로서의 형태

**실리카(SiO<sub>2</sub>)**

**알콕시화물, 규산염나트륨, 콜로이드**

**이산화티탄(TiO<sub>2</sub>)**

**알콕시화물, 콜로이드**

**알루미나(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)**

**알콕시화물,콜로이드,알루미늄산염나트륨, 염**

- <44> 특정한 전구체는 요구되는 겔의 형태에 따라 선택된다.
- <45> 본 발명의 겔 조성물을 제조하는 공정 및 예시 공정에 관한 더 상세한 설명은 이하의 실시예 부분에 기재한다.
- <46> 상기한 바와 같이, 본 발명의 겔 조성물은 종래의 겔 조성물에 대해 공지된 어떠한 용도에도 사용될 수 있다. 당업자들에 의해 인식되는 바와 같이, 본 발명의 특정 겔 조성물이 특정 용도에 사용하는 것이 바람직한지 여부는 조성물의 조성물 내에 혼입된 탄소질물질의 양 및 벌크 밀도와 같은 겔 조성물의 특성에 의존한다.
- <47> 본 발명의 겔 조성물을 사용하는 전형적인 예는 이에 한정되는 것은 아니나 아래와 같다.
- <48> 절연 용도
- <49> 본 발명의 겔 조성물은 아래에 기재된 바와 같이 단열, 전기절연 및/또는 방음 분야에 유리하게 활용될 수 있다.
- <50> 단열
- <51> 본 발명의 겔 조성물은 단열재에 느슨한 충전물로서 혼입될 수 있다. 또한, 본 발명의 겔 조성물은 규산염 칼슘, 광물 섬유, 금속산화물 분말, 중합체 기포, 석면 등으로 이루어진 군에서 선택된 물질과 배합하여 그 배합물을 단열재에 혼입할 수 있다. 또는, 본 발명의 겔 조성물은 단열재로서 진공상태에서 이용할 수도 있다.
- <52> 전기 절연
- <53> 본 발명의 겔 조성물은 전기 절연재료 사용하기 위한 중합체 조성물내에 혼입할 수 있다.
- <54> 방음
- <55> 본 발명의 겔 조성물은 방음재 중에 느슨한 충전물로서 혼입될 수 있다. 또는, 본 발명의 겔 조성물은 셀룰로오스, 중합체 기포와 같은 다른 물질과 배합하여 그 배합물을 방음재 중에 충전물로서 혼입할 수도 있다.
- <56> 미립자 첨가제 용도
- <57> 본 발명의 겔 조성물은 증점제, 광택제거제, 충전물 및 보강제와 같은 미립자 첨가제로서 사용될

수 있으며 각각의 예는 다음과 같다.

- <58> 증점제
- <59> 본 발명의 겔 조성물은 안료 조성물과 인쇄용 잉크에서 증점제로 사용될 수 있다. 본 발명의 비독성 겔 조성물은 식품 부분에서 증점제로 사용될 수도 있다.
- <60> 광택제거제
- <61> 광택제거제("flattening agent")에서 플래터(flatter)란 용어는 페인트, 와니스 또는 필름의 마감면을 흐리게하고 광택을 없애는 조성물을 의미한다. 본 발명의 겔 조성물은 래커, 반광택 와니스, 에나멜 또는 비닐 필름용 광택제거제로 사용될 수 있다.
- <62> 충전물
- <63> 본 발명의 겔 조성물은 시멘트, 접착제 및 천연 또는 합성 고무 조성물의 충전물로 사용될 수 있다.
- <64> 보강제
- <65> 본 발명의 겔 조성물은 금형된 브레이크 라이닝과 같은 중합체 조성물 및 천연 또는 합성 고무 조성물에서 보강제로 사용될 수 있다.
- <66> 흡착제
- <67> 본 발명의 겔 조성물은 액체, 기체 또는 수증기 흡착을 위한 물질로서 사용될 수 있다.
- <68> 촉매 지지체
- <69> 본 발명의 겔 조성물은 분말 금속 또는 금속 산화물 촉매 물질을 위한 주(主) 지지체로서 사용될 수 있다.
- <70> 막
- <71> 본 발명의 겔 조성물은 액체, 기체 또는 수증기의 선택 분리를 위한 물질로서 사용될 수 있다.
- <72> 필터
- <73> 본 발명의 겔 조성물은 미립자용 여과 물질로서 사용될 수 있다.
- <74> 방사선 측정기
- <75> 본 발명의 겔 조성물은 체렌코프(Cherenkov) 방사선 측정기와 같은 방사선 측정기에서 방사선을 측정하기 위하여 사용될 수 있다.
- <76> 내열코팅제
- <77> 본 발명의 겔 조성물은 단열충코팅제로서 박막 필름 형태로 사용될 수 있다.
- <78> K값이 낮은 유전체
- <79> 본 발명의 겔 조성물은 예를들면 저 유전율 물질로서 유전체 물질에 사용될 수 있다.
- <80> 상기한 용도 리스트를 통해 당업자들은 본 발명의 겔 조성물은 지금까지 종래의 겔 조성물을 사용한 모든 용도는 아니지만 많은 용도에 사용될 수 있음을 파악할 수 있을 것이다. 또한, 전술한 리스트는 본 발명의 겔 조성물의 모든 용도를 망라한 것은 아니고 단지 다양한 잠재적 용도 중의 대표적인 것 뿐이라는 것도 인식할 수 있을 것이다.
- <81> 여러 측면에서의 이점 및 효율성 및 본 발명의 실시예는 아래의 실험 방법을 사용한 아래 실시예에 의해 추가로 설명될 것이다.
- <82> 실시예에서 사용한 카본블랙의 질소 표면적( $N_2SA$ )은 g당 평방미터( $m^2/g$ )로 표현되며 ASTM 실험공정 D3037 방법 A에 따라 결정되었다.
- <83> 실시예에서 사용한 카본블랙의 디부틸 프탈레이트 흡착량(DBP)은 카본블랙 100g당 ml( $ml/100g$ )로 표현되며 ASTM D2414에 기재된 공정에 따라 결정되었다.
- <84> 실시예에서 사용한 카본블랙의 주입자 크기의 평균은 nm로 표현하며 ASTM D3849에 기재된 공정에 따라 결정되었다.
- <85> 주사 전자현미경 사진은 히다찌(주)에 의해 생산되어 판매된 히다찌 S570 주사 전자현미경을 사용하여 촬영하였다. 주사형 전자 현미경 사진 각각은 20kV의 동력에서 25000배의 배율로 촬영되었다.
- <86> 변형 및 비변형된 카본블랙의 수용성 잔기는 다음의 공정에 의해 결정되었다. 카본블랙 5g을 5분 동안 물 45g으로 진탕하였다. 생성된 분산물을 체를 통해 거르고 세척액이 무색이 될때까지 물로 행구었다. 달리 표시가 없는 경우 메쉬 325인 체를 사용하였다. 체를 건조시킨 후, 체 위에 남아있는 잔기의 총량을 결정하고 실험에 사용된 카본블랙의 퍼센트로 표시하였다. 겔 조성물의 벌크 밀도와 박리성은 다음의 공정을 사용하여 결정하였다.
- <87> 벌크 밀도
- <88> 겔을 원통형 금형에서 주형하였다. 모든 경우 겔의 원통형 모양은 건조 과정을 거쳐도 유지되었다. 전체 겔 부피는 건조 겔의 부피를 물리적으로 측정하여 결정되었다. 벌크 밀도는 건조 겔의 중량을 측정하고 기하학적인 부피로 나누어 결정되었다. 막대 모양 같은 외형이 유지되지 않은 경우 상기 방법의



검증으로 수은 치환법이 사용되었다. 수은 치환법에 의한 겔 조성물의 벌크 밀도 측정은 다음과 같은 방법으로 수행되었다. 깨끗하게 비어있는 유리셀에 수은을 특정 높이까지 채우고 셀의 무게를 측정한다. 수은을 제거하고 셀을 다시 깨끗이 한다. 이어서 기지중량의 건조 겔 샘플을 유리셀에 투입하고 수은을 전과 동일한 특정 높이까지 셀에 첨가한다. 수은과 샘플을 포함한 셀의 중량을 측정한다. 양자의 경우에 있어서 수은의 중량을 수은의 밀도에 기초하여 부피로 환산한다. 비어있는 셀을 채운 수은의 부피와 샘플을 포함한 셀을 채운 수은의 부피의 차이는 치환된 부피이다. 수은이 샘플을 습윤시키지 않기 때문에 이 부피는 샘플의 전체 부피와 동일하다. 이어서 밀도는 샘플의 중량을 치환된 부피로 나눔으로써 결정된다.

<89> 박리성

<90> 겔 조성물의 박리성은 다음의 방법으로 측정되었다. 특정 크기의 건조겔(대략 직경 6mm, 높이가 25mm)을 손의 압력을 사용하여 흰천 위에 겔의 25mm길이를 따라 2-3인치 정도로 수회 문지른다. 탄소 침적의 상대적인 정도는 컴퓨터에 의해 만들어진 보정된 무채색 등급과 비교하였다. 컴퓨터는 여러가지의 무채색농도를 만들어 무채색의 정도에 따라 0에서 50의 수치를 붙인다. 수치가 0에서 50으로 증가할수록 무채색정도도 커진다. 겔을 전에 문지르고 난 후 침적된 탄소와 컴퓨터 표시이를 시각 비교하고 무채색 등급 수치가 이에 따라 지정되었다. 수치가 낮으면 박리성이 적은 상태이다. SEM 사진과 함께 박리성 수치는 탄소 물질이 겔 성분에 부착되었는지를 결정하는데 사용된다.

### 도면의 간단한 설명

<91> 도 1: 실시예 5에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<92> 도 2: 실시예 8에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<93> 도 3: 실시예 14에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<94> 도 4: 실시예 18에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<95> 도 5: 실시예 19에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<96> 도 6: 실시예 20에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<97> 도 7: 실시예 21에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

<98> 도 8: 실시예 22에서 제조된 헵탄에서 건조된 겔 조성물의 단편 표면의 주사 전자현미경(SEM) 사진

### 실시예

<99> 다음의 실시예들은 탄소 물질들을 변형시키는 방법과 알콕시화물 전구체와 규산염나트륨 전구체로부터 본 발명의 겔 조성물을 포함하는 겔 조성물의 제조에 관해 설명한다.

<100> 실시예

<101> CB-A, CB-B 및 CB-C의 세가지 카본블랙을 다음의 실시예에서 사용하였다. 이들의 분석 성질은 상기한 절차에 의해 결정되었으며 아래 표1과 같다.

<102> 표1-카본블랙의 분석성질

카본블랙	N <sub>2</sub> SA(m <sup>2</sup> /g)	DBP(ml/100g)	평균 주입자크기(nm)
CB-A	24	132	130
CB-B	230	70	16
CB-C	560	120	16

<104> 탄소 물질의 변형

<105> 실시예 1-4는 탄소 물질, 특히 카본블랙의 변형 방법에 대해서 설명한다. 이들 실시예에는 다른 실시예에서 사용하고 있는 변형된 카본블랙, 변형된 CB-A, 변형된 CB-B, 페놀성 CB-B 및 변형된 CB-C를 제조하기 위해 사용된 방법도 기재하고 있다.

<106> <실시예 1>

<107> 본 실시예에는 상기 표1에서 CB-A로 지정된 카본블랙을 이용한 변형된 카본블랙 제품의 제조를 설명한다.

<108> CB-A 200g을 물 21g중의 술폰산 10.1g과 진한 질산 6.23g용액에 첨가하였다. 물10g중의 아질산 나트륨 4.87g용액을 신속히 교반되고 있는 혼합물에 첨가하였다. 카본블랙과 반응하는 4-술폰벤젠디아조늄 수산화물 분자내 염이 바로 생성되었다. 15분 경과 후, 분산물을 125℃의 오븐에서 건조하였다. 생성

된 카본블랙 제품은 "변형된 CB-A"라고 지정하였으며  $4-C_6H_4SO_3^-$ 기가 부착된 카본블랙이다.

<109> <실시에 2>

<110> 본 실시예에는 상기 표1에서 CB-B로 지정된 카본블랙을 이용한 변형된 카본블랙 제품의 제조를 설명한다.

<111> 솔파닐산 36.2g, 수산화나트륨 8.76g과 물 162g으로부터 제조된 용액을 얼음에서 냉각시켰다.  $NO_2$  20g을 교반을 하면서 첨가하고 생성된 현탁액을 75℃까지 가온하고 지체없이 CB-B 300g을 함유한 펠렛 타이저에 첨가하였다. 3분 동안 펠렛화시키고 나서 물 35g을 추가로 첨가하였다. 추가로 2분간 펠렛화시키고 나서 펠렛타이저에서 제품을 제거하고 약 125℃의 오븐에서 건조시켰다. 제품은 반응하지 않은 카본블랙의 경우 94%인데 반해 325 메쉬에서 0.14%의 잔류물을 갖는다. 생성된 카본블랙 제품은 "변형된 CB-B"라고 지정하였으며,  $4-C_6H_4SO_3^-$ 기가 부착된 카본블랙이다.

<112> <실시에 3>

<113> 본 실시예에는 상기 표1에서 CB-B로 지정된 카본블랙을 이용한 변형된 카본블랙 제품의 제조를 설명한다.

<114> 5-아미노-2-히드록시벤젠 술폰산(1.89g)을 따뜻한 물 100g에 용해시키고, CB-B 10g을 첨가하고, 이 혼합물을 실온으로 냉각하였다. 진한 염산 1.18g을 첨가하고 물중의 아질산나트륨 0.85g 용액을 첨가하여 카본블랙과 반응하는 디아조늄 염이 바로 생성되었다. 15분 동안 교반 후 생성된 분산물을 125℃의 오븐에서 건조하였다. 제품은 반응하지 않은 카본블랙의 경우 94%인데 반해 325메쉬에서 0.06%의 잔류물을 갖는다. 생성된 카본블랙 제품은 "페놀성 CB-B"라고 지정하였으며,  $4,3-C_6H_4(OH)(SO_3^-)$ 기가 부착된 카본블랙이다.

<115> <실시에 4>

<116> 본 실시예에는 상기 표1에서 CB-C로 지정한 카본블랙을 이용한 변형된 카본블랙 제품의 제조를 설명한다.

<117> CB-C 200g을 물 2.8L에 혼합하였다. 솔파닐산 42.4g을 교반되고 있는 혼합물에 용해시키고 이어서 물 100g중의  $NO_2$  25.5g 냉용액을 신속히 교반하면서 첨가하였다. 카본블랙과 반응하는 4-술포벤젠디아조늄 수산화물 분자내 염이 바로 생성되었다. 거품을 제거하였다. 한시간 동안 교반 한 후  $NO_2$  5g을 혼합물 내에 직접 투입하였다. 그 분산물을 15분 동안 교반하고 하룻밤을 경과시킨 후 130℃의 오븐에서 건조시켰다. 생성된 카본블랙 제품은 "변형된 CB-C"라고 지정하였으며,  $4-C_6H_4SO_3^-$ 기가 부착된 카본블랙이다.

<118> 다음의 실시예에서 설명하는 바와 같이, 변형된 카본블랙, 변형된 CB-A, 변형된 CB-B, 페놀성 CB-B 및 변형된 CB-C는 겔 성분에 부착될 수 있고 본 발명의 겔 조성물을 만드는 데 사용된다. 비교 목적으로 변형되지 않은 카본블랙, CB-A, CB-B 및 CB-C를 사용한 겔 조성물도 제조하였다.

<119> <알콕시화물 겔 전구체 실시예((고체)충진질량으로 50중량%까지)>

<120> 실시예 5-22는 탄소성분 50질량% (고체)이하의 양과 단지 알콕시화물 전구체에서 생성된 겔에 관한 것이다.

<121> <실시에 5>

<122> 500ml용 둥근 바닥 플라스크에 순도 98%의 테트라에틸 오르쏘실리케이트 61ml, 에틸알콜 61ml, 탈이온수 4.87ml 및 1M 염산 0.2ml를 격렬하게 교반하면서 혼합하여 진한 실리카졸을 제조하였다. 플라스크를 가온 맨틀에 올려 놓고 그 혼합물을 70℃에서 2시간 동안 냉각기를 사용하면서 환류시켰다. 이산화규소(실리카) 15 중량%를 함유하는 생성된 졸을 냉각시키고 사용할 때까지 5℃에서 보관하였다.

<123> 겔화시키기 전에 졸을 실온으로 가온시키고 생성된 혼합물이 이산화규소 11 중량%를 포함하도록 에틸 알코올로 희석하여 농도를 맞춘다. 이는 원래의 졸 70부피%와 에틸알콜 30부피%를 혼합함으로써 달성된다. 겔화는 암모니아 대 졸의 부피비가 1:10이 되도록 0.5M 수산화암모늄을 첨가함으로써 개시하였다. 암모니아를 첨가한 후 2-5분 동안 교반을 하고 원통형 튜브에 주형하였다. 7-10분 이내에 겔이 되었다. 건조를 막기 위하여 주형내에서 밀폐시키고 50℃에서 24시간 동안 에이징시켰다. 초기 에이징 후에 주형으로부터 겔을 제거하고 탈이온수를 함유하는 밀폐된 튜브에 넣고 70℃에서 24시간 동안 더 에이징시켰다. 오븐에서 제거하여 겔을 탈이온수로서 여러번 세척하였다.

<124> 50℃에서 10시간 동안 아세톤을 함유하는 밀폐된 튜브에 겔을 넣고 주로 물인 공극내의 액체를 치환하도록 두었다. 10시간이 다 되어서 겔을 아세톤으로 세척하였다. 이 과정을 총 세번 반복하였다. 상기 세번의 과정 진행후 처음에는 50℃에서 12시간, 그리고 140℃에서 추가로 12시간 동안 겔의 일부를 아세톤으로 부터 직접 건조시켰다. 생성된 겔은 약간의 수축을 보이며 각각은  $0.5-0.6 \text{ g/cm}^3$ 의 벌크 밀도를 가졌다.

<125> 나머지 겔은 헵탄을 포함하는 밀폐된 튜브에 넣고 공극 액체가 치환되도록 50℃에서 10시간 동안 두었다. 10시간이 다 되어서 겔을 헵탄으로 세척하였다. 이 과정을 세번 반복하였다. 상기 세번의 과정 진행 후 처음에는 70℃에서 12시간, 그리고 140℃에서 추가로 12시간 동안 겔을 헵탄으로 부터 직접 건조시켰다. 생성된 겔은 아주 조금 수축된 원통형을 유지하였고, 각각은 벌크 밀도가  $0.4-0.44 \text{ g/cm}^3$ 이었다.

<126> 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플의 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 공정에 따라 결정하였으며 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.

- <127> <실시예 6>
- <128> 본 실시예에는 표1에서와 같은 분석 특성을 가지는 CB-A라고 지정한 변형되지 않은 카본블랙 성분을 함유하는 겔 조성물의 제조에 관하여 설명한다.
- <129> 본 실시예에서는 하나의 예외를 제외하고는 실시예 5에서의 과정을 실질적으로 반복한다. 겔 형성을 개시하기 전에 특정한 양의 CB-A를 원래의 졸 70부피%와 에틸 알콜 30부피%로 희석된 졸에 투입하였다. 첨가된 카본블랙의 양은 전체 고체 함량이 동일하게 유지되도록 계산하여 실질적으로 첨가되는 카본블랙의 양이 실리카의 동등 질량을 대체했다. 본 실시예에서 요구되는 고체 함량은 실시예 5에서와 같이 11%이다. 그러므로 고체 11% 중 95%는 실리카로 구성되고 나머지 5%의 고체는 유리 카본블랙으로 첨가되었다. 고체 함량을 동일하게 유지하기 위하여 적당한 양의 에틸 알콜로 졸을 희석하여 정해진 실리카 함량으로 맞추었다.
- <130> 상대적 비율을 결정한 후 적당한 양의 카본블랙을 졸에 5-10분 동안 교반하면서 투입하였다. 전체 고체 함량 중 5%가 CB-A이고 나머지가 실리카가 되도록 CB-A를 용액내로 분산시켰다. 겔화를 실시예 5에서와 같이 개시하였다. 겔화를 촉진시키기 위해서 사용된 부피비를 1:10으로 유지하였고 염기의 농도는 0.5M로 유지하였다.
- <131> 선행 실시예에서와 같이 암모니아를 첨가한 후 2-5분 동안 CB-A를 격렬하게 교반하면서 분산시키고 원통형 튜브에서 주형하였다. 8-12분 이내에 겔이 되었다. 겔을 50℃에서 24시간 동안 에이징시키고 이어서 주형으로부터 분리하여 70℃의 탈이온수에서 24시간 동안 더 에이징시켰다. 겔의 용매 치환을 실시하고 실시예 5에서 기재한 바와 같이 아세톤 및 헵탄으로부터 건조시켰다.
- <132> 아세톤과 헵탄에서 건조된 대표적인 샘플겔의 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.
- <133> <실시예 7-11>
- <134> CB-A의 양이 전체 고체의 10%에서 50%로 증가시키고, 나머지가 실리카로 한 점을 제외하고는 실시예 6에서의 과정을 반복하였다. 각 실시예에서 사용한 카본블랙의 특정한 양은 전체 고체의 %로 표시하여 아래 표에 나타내었다.

실시예	카본블랙의 양(CB-A) 전체 고체%
7	10
8	15
9	20
10	30
11	50

- <136> CB-A의 양이 10에서 20%로 증가할 때, 습윤 겔은 현저히 강해졌다. 주어진 용매의 경우, 건조 겔은 CB-A 함량이 증가할수록 수축은 줄어들고 벌크 밀도는 낮아짐을 보였다. 카본블랙 함량에 독립적인 하나의 인자는 각 건조 겔의 박리성이었다. CB-A를 함유하는 건조 겔을 취급할 때, 상당한 양의 잔류 카본블랙이 물질로부터 이를 다루는 장갑이나 주위 매질로 침적되었다. 또한, CB-A로 만들어진 겔용 탄소 미립자의 마모율도 상당하였다. 겔의 박리성과 상당한 마모율은 겔 성분에 부착되지 않는 카본블랙의 존재를 나타낸다.
- <137> 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플의 벌크 밀도와 박리성은 각 실시예에서 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.
- <138> <실시예 12>
- <139> 본 실시예에는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함한 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <140> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 1의 변형된 CB-A가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 6-11에서의 과정을 실질적으로 반복하였다. 실시예 6에서처럼, 부분적으로 가수분해된 실리카 용액에 변형된 CB-A를 분산시켜 전체 고체함량의 5%가 변형된 CB-A이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 이어서, 한 세트의 겔을 암모니아를 첨가하여 제조하고 전술한 바와 같이 에이징시키고 아세톤과 헵탄으로 용매 치환을 하고, 실시예 7-11에서와 같이 건조하였다.
- <141> 변형된 CB-A는 비변형된 CB-A보다 더 쉽게 분산되고 침강성에 있어서 더 오랫동안 분산된 상태를 유지한다. 습윤상태에서 겔은 카본블랙이 없는 겔보다 강한 것 같고 비변형된 CB-A를 함유하는 겔보다는 약간 강한 것 같다. 그러나 주어진 용매에서 벌크 밀도는 변형된 CB-A를 사용하여 만든 물질이 더 낮았다. 보다 중요한 점은 박리성이 상당히 감소하였다는 것이며, 이는 카본블랙이 겔 네트워크에 활발히 혼입되고 겔 성분에 부착된다는 것을 나타낸다.
- <142> 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.
- <143> <실시예 13-17>
- <144> 본 실시예에는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.



<145> 변형된 CB-A의 양이 전체 고체의 10%에서 50%로 증가하였고, 나머지가 실리카인 점을 제외하고는 실시예 12에서의 공정을 반복하였다. 각 실시예에서 사용한 카본블랙의 특정한 양은 전체 고체의 %로 표시하여 아래의 표에 나타내었다.

실시예	카본블랙의 양(변형된 CB-A) 전체 고체%
13	10
14	15
15	20
16	30
17	50

<147> 비변형된 CB-A로 만들어진 겔과 비교하여, 변형된 CB-A를 혼입한 실시예 13-17의 건조 겔은 변형된 CB-A 함량이 증가할수록 수축은 줄어들고 주어진 용매에서 벌크 밀도는 낮아짐을 보였다. 또한, 주어진 용매와 변형된 CB-A 함량에서 습윤 겔은 물리적으로 강하고, 건조 겔은 비변형된 CB-A로 만들어진 겔과 비교하여 낮은 벌크 밀도를 가졌다.

<148> 전체 변형된 CB-A 겔 전체 계열들에서의 다른 현저한 특징은 박리성의 현저한 차이였다. 건조 겔을 취급함에 있어 비변형된 CB-A로 만들어진 겔 조성물과 비교하여 장갑과 주위 매질에 침적되는 잔류 카본이 상당히 감소하였다. 변형된 CB-A로 만들어진 겔에서의 카본 미립자들의 마모율도 비변형된 CB-A로 만들어진 겔과 비교하여 볼 때 현저히 줄어들었다. 이러한 결과는 변형된 CB-A가 겔 성분에 부착되었음을 나타낸다.

<149> 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 각 실시예에서 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표 2와 3에 나타내었다.

<150> <실시예 18>

<151> 본 실시예에서는 표 1에 기재된 분석 특성을 갖는 "CB-B"라고 표시한 다른 카본블랙을 사용하여 실시예 6-12에서 사용된 공정을 실질적으로 반복하였다.

<152> 선행 실시예에서처럼, 부분적으로 가수분해된 실리카 용액에 CB-B를 분산시켜 전체 고체함량의 15%가 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 이어서, 암모니아를 첨가하여 한 세트의 겔을 제조 및 에이징시켰고 용매 치환을 한 후 실시예 5에서와 같이 건조하였다.

<153> 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.

<154> <실시예 19>

<155> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.

<156> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 2의 변형된 CB-B를 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 18에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.

<157> 선행 실시예에서처럼, 변형된 CB-B를 확정된 계획서에 따라 세척한 후 부분적으로 가수분해된 실리카 용액에 분산시켜 전체 고체함량의 15%가 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 이어서, 한 세트의 겔을 전술한 바와 같이 제조 및 에이징시켰고, 아세톤 및 헵탄으로 용매 치환을 하고 선행 실시예에서와 같이 건조하였다. 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.

<158> <실시예 20>

<159> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.

<160> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 3의 페놀성 CB-B가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 19에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.

<161> 선행 실시예에서처럼, 페놀성 CB-B를 세척한 후 부분적으로 가수분해된 실리카 용액속에 분산시켜 전체 고체 함량의 15%가 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 암모니아를 첨가하여 한 세트의 겔을 제조하여 에이징시켰고, 용매 치환을 하고 선행 실시예에서와 같이 건조하였다. 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.

<162> <실시예 21>

<163> 본 실시예는 표 1에 기재된 분석 특성을 갖는 "CB-C"라고 표시한 다른 카본블랙을 사용하여 실시예 5-21에서 사용된 공정을 실질적으로 반복하였다.

<164> 선행 실시예에서처럼, 부분적으로 가수분해된 실리카 용액속에 CB-C를 분산시켜 전체 고체함량의 15%가 CB-C이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 이어서, 암모니아를 첨가하여 한 세트의 겔을 제조하고 용매 치환을 하고 선행 실시예에서와 같이 건조하였다. 아세톤과 헵탄에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에

나타내었다.

<165> <실시예 22>

<166> 본 실시예는 겔 성분에는 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.

<167> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 4의 변형된 CB-C가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 21에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.

<168> 선행 실시예에서처럼, 변형된 CB-C를 세척한 후 부분적으로 가수분해된 실리카 용액속으로 분산시켜 전체 고체 함량의 15%가 변형된 CB-C이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 암모니아를 첨가하여 한 세트의 겔을 제조하고 용매 치환을 하고 선행 실시예에서와 같이 건조하였다. 아세톤과 헥산에서 건조된 겔들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표2와 3에 나타내었다.

<169> 표 2 - 아세톤에서 건조된 알콕시화물 전구체 겔(탄소가 50%이하)

실시예	카본블랙	카본블랙 중량(고체)%	건조 용매	벌크밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	박리성
5	무	무	아세톤	0.60	---
6	CB-A	5%	아세톤	0.55	17.5
7	CB-A	10%	아세톤	0.45	23
8	CB-A	15%	아세톤	0.48	35
9	CB-A	20%	아세톤	0.43	40
10	CB-A	30%	아세톤	0.49	35
11	CB-A	50%	아세톤	0.51	45
12	변형된 CB-A	5%	아세톤	0.45	7.5
13	변형된 CB-A	10%	아세톤	0.43	15
14	변형된 CB-A	15%	아세톤	0.38	15
15	변형된 CB-A	20%	아세톤	0.38	25
16	변형된 CB-A	30%	아세톤	0.42	25
17	변형된 CB-A	50%	아세톤	0.47	30
18	CB-B	15%	아세톤	0.45	25
19	변형된 CB-B	15%	아세톤	0.44	15
20	페닐성 CB-B	15%	아세톤	0.35	10
21	CB-C	15%	아세톤	0.38	35
22	변형된 CB-C	15%	아세톤	0.37	15

<171> 표 3 - 헵탄에서 건조된 알콕시화물 전구체 겔(탄소가 50%이하)

실시에	카본블랙	카본블랙 중량(고체) %	건조용매	벌크밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	박리성	SEM사진#
5	무	무	헵탄	0.40	--	1
6	CB-A	5%	헵탄	0.38	15	--
7	CB-A	10%	헵탄	0.37	20	--
8	CB-A	15%	헵탄	0.31	30	2
9	CB-A	20%	헵탄	0.34	40	--
10	CB-A	30%	헵탄	0.36	35	--
11	CB-A	50%	헵탄	0.41	45	--
12	변형된CB-A	5%	헵탄	0.36	5	--
13	변형된CB-A	10%	헵탄	0.34	15	--
14	변형된CB-A	15%	헵탄	0.29	10	3
15	변형된CB-A	20%	헵탄	0.30	25	--
16	변형된CB-A	30%	헵탄	0.31	20	--
17	변형된CB-A	50%	헵탄	0.33	30	--
18	CB-B	15%	헵탄	0.36	25	4
19	변형된CB-B	15%	헵탄	0.31	10	5
20	페놀성CB-B	15%	헵탄	0.26	5	6
21	CB-C	15%	헵탄	0.31	30	7
22	변형된CB-C	15%	헵탄	0.30	10	8

<173> SEM사진 # : 주사 전자현미경 사진 번호

<174> SEM사진에서 보는 바와 같이, 특히, 실시예 14의 본 발명의 겔 조성물의 사진 3, 실시예 19의 본 발명의 겔 조성물의 사진 5, 실시예 20의 본 발명의 겔 조성물의 사진 6 및 실시예 22의 본 발명의 겔 조성물의 사진 8에서, 변형된 카본블랙은 본 발명의 겔 조성물 내에서 실리카겔 성분에 부착되어 있다. 사진 3, 5, 6 및 8에 나타나 있듯이, 이들 겔 조성물의 단편 표면의 SEM사진에서 뚜렷이 구별되도록 나타나는 부착된 탄소질 성분(변형된 카본블랙)은 없거나 있어도 극소량이다. 이러한 결과는 변형된 카본블랙이 실리카 겔 성분의 여러 곳에 부착되어 있고 겔 성분에 부착된 탄소성분을 포함하지 않는 종래의 겔 조성물에서의 실리카간의 결합보다 카본블랙에 대한 실리카의 결합이 더 강하다는 것을 나타낸다.

<175> 이와는 달리, 사진 2, 4 및 7에 나타나 있듯이 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 포함하는 겔 조성물의 단편 표면의 SEM사진은 뚜렷한 카본블랙응집체를 보인다. 이들 겔 조성물에서 카본블랙은 실리카겔 성분에 부착되어 있지 않는다.

<176> <규산염 나트륨 겔 전구체(최고 50%중량(고체)의 로딩) 실시예>

<177> 실시예 23-28은 규산염 나트륨 전구체와 탄소성분 50중량%(고체)이하로부터 제조된 겔에 관한 것이다.

<178> <실시예 23>

<179> 실리카 원액을 규산염 나트륨에 대한 물의 부피비가 1.33:1으로 되게 탈이온수와 시판되는 규산염(SiO<sub>2</sub>/Na<sub>2</sub>O 몰비: 3.22:1)을 혼합하여 제조하였다. 재킷 장치된 비이커에서 격렬하게 교반하면서 혼합물의 온도를 15℃로 유지하였다. 진한 황산(96%)을 물로 희석하여 2M 황산을 포함하는 별개의 용액을 제조하였다. 규산염 나트륨 원액 104ml의 액적을 교반된 2M 산 50ml에 천천히 첨가하였다. 규산염 첨가의 속도는 분당 1ml로 일정하게 유지하고, 산성용액은 재킷장치된 비이커에서 15℃로 유지시켰다. 생성된 실리카졸은 염용액에서 약 10중량%의 실리카를 함유하였다. 겔화는 졸의 pH가 5에 이를 때까지 1M 수산화 나트륨의 첨가를 조절함으로써 이루어 졌다. 이때 졸을 1분 동안 격렬하게 교반시키고 나서 원통형 튜브에서 주형하였다. 겔화는 5분 이내에 일어나며 건조를 막기 위하여 튜브를 밀폐시켰다. 겔은 주형 내에서 50℃에서 1-2시간동안 에이징시킨 후, 탈이온수를 함유하는 밀폐된 튜브에 겔을 넣어 실온으로 유지하였다. 전체 12시간 동안 매 3시간마다 신선한 물을 첨가하고 이때, 황산나트륨 염이 겔에서 완전히 제거되었다는 것을 나트륨 전극을 삽입하여 결정하였다.

<180> 이어서, 겔은 탈이온수중에서 70℃에서 최대 24시간동안 에이징시켰다. 오븐에서 제거한 후, 겔을 여러번 탈이온수로 세척하고, 아세톤으로 채워진 밀폐된 튜브에 넣고 50℃에서 10시간 동안 공극 액체를 치환시켰다. 10시간 끝에 겔을 아세톤으로 세척하고 50℃의 새로운 아세톤에 저장하였다. 이 과정을 세번 반복하였다.

<181> 세번 시행 후 겔을 헵탄을 함유하는 밀폐된 튜브에 넣고, 10시간 동안 공극 액체 교환을 시켰다. 10시간 끝에 겔을 헵탄으로 세척하고, 50℃의 새로운 헵탄에 저장하였다. 이 과정을 세번 반복하였다. 세번 시행 후에, 처음에는 70℃에서 12시간 동안 이어서 140℃에서 추가로 12시간동안 겔을 헵탄으로 부딪 직접 건조시켰다. 생성된 건조 겔은 원통형을 유지하고 최소 수축을 나타내었다.

<182> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결

정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.

- <183> <실시에 24>
- <184> 본 실시예에는 표1에 기재된 분석 특성을 갖는 "CB-A"라고-표시한 변형되지 않은 카본블랙 성분을 함유하는 겔 조성물의 제조에 관하여 설명한다.
- <185> 실시예 23에서의 단계를 공정을 약간 변화시켜 실질적으로 반복한다. 겔 형성을 개시하기 전에 특정한 양의 카본블랙 즉, (실시에 6-11에서와 같이) CB-A를 졸에 첨가하였다. 첨가되는 카본블랙의 양은 전체 고체함량이 동일하도록 유지하여 계산하여, 실질적으로 첨가된 카본블랙이 동일 질량의 실리카를 대체하도록 하였다. 본 실시예에서 요구되는 고체 함량은 실시예 23에서와 같이 10%이다. 그러므로 고체 10%중 90%는 실리카로 구성되고, 나머지 10%의 고체는 유리 카본블랙(CB-A)으로서 첨가되었다. 고체 함량을 동일하게 유지하기 위하여 적당한 양의 탈이온수로 졸을 희석하여 실리카 함량을 조절하였다.
- <186> 상대적비를 결정한 후, 적당한 양의 카본블랙을 졸에 5-10분 동안 교반하면서 투입하였다. 황산과 함께 규산염 나트륨을 함유하는 용액내에 CB-A를 분산시켜 전체 고체 함량중 10%가 CB-A이고 나머지가 실리카가 되도록 하였다. 1M 수산화 나트륨을 사용하여 최종pH 5까지 증가시켜 실시예 23에서와 같이 겔화를 개시시켰다.
- <187> 겔화 후 그 물질을 실시예 23에서와 같이 50℃에서 1-2시간 동안 에이징시키고 주형으로부터 제거한 후 이어서 실온에서 12시간 동안 염이 제거되도록 세척하였다. 충전된 겔을 용매 치환시키고 실시예 23에서처럼 헤파탄에서 건조시켰다.
- <188> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.
- <189> <실시에 25>
- <190> 본 실시예에는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <191> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 1의 변형된 CB-A가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 24에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.
- <192> 변형된 CB-A를 아세톤이 있는 비이커에 분산시키고, 진공 여과를 하고 세척액의 pH가 중성에 가깝게 될 때까지 탈이온수로 반복하여 세척하였다. 이어서, 변형된 CB-A를 140℃에서 12시간 동안 건조시켰다.
- <193> 실시예 24에서처럼 변형된 CB-A를 황산과 함께 규산염 나트륨을 함유하는 용액내에 분산시켜 전체 고체 함량 중 10%가 변형된 CB-A이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 변형되지 않은 CB-A와 대조적으로 변형된 CB-A의 첨가는 표면기들의 안정성에 의해 제한되었다. pH값이 3보다 클 경우에만 변형된 CB-A를 졸에 첨가하여 표면 변형을 유지할 수 있었다. 그러므로 1M의 수산화 나트륨의 첨가량을 조절하여 pH를 조심스럽게 3으로 상승시키는 적절한 양의 변형된 CB-A를 졸에 분산시켰다. 전과 같이, 졸의 pH가 5가 될 때까지 1M의 수산화나트륨 첨가를 조절하여 겔화를 수행하였다.
- <194> 겔화 후 그 물질을 전과 같이 50℃에서 1-2시간 동안 에이징시키고, 주형으로부터 제거하고 실온에서 12시간 동안 염이 제거되도록 세척하였다. 이어서, 겔 조성물을 탈이온수로 70℃에서 최대 24시간까지 에이징시켰다. 이어서, 겔의 일부를 용매 치환시키고 선행 실시예처럼 헤파탄에서 건조시켰다.
- <195> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성을 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.
- <196> <실시에 26>
- <197> 본 실시예에는 표 1에 기재된 분석 특성을 가지는 "CB-B"라고 표시한 다른 카본블랙을 사용하여 실시예 24에서 사용된 공정을 실질적으로 반복하였다.
- <198> 겔 형성을 개시하기 전에 특정 양의 CB-B(상기와 같이)를 졸에 투입하였다. 첨가된 CB-B의 양은 전체 고체함량이 동일하게 유지되도록 계산하여, 실질적으로 첨가되는 CB-B의 양이 실리카의 동일 질량을 대체하도록 하였다. 본 실시예에서 요구되는 총 고체 함량은 실시예 23에서와 같이 10%이었다. 그러므로 고체 10%중 90%는 실리카로 구성되고 나머지 10%의 고체는 유리 CB-B로서 첨가하였다. 고체 함량을 동일하게 유지하기 위하여 적당한 탈이온수의 양으로 졸을 희석하여 실리카 함량을 조절하였다. 상대적 비율을 결정한 후 적당한 양의 카본블랙을 졸에 5-10분 동안 교반하면서 투입하였다. 황산과 함께 규산염 나트륨을 함유하는 용액내에 CB-B를 분산시켜 전체 고체 함량중 10%가 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 1M의 수산화 나트륨을 사용하여 최종 pH 5까지 증가시켜 선행 실시예에서와 같이 개시시켰다. 겔화 후 그 물질을 전과 같이 50℃에서 1-2시간 동안 에이징시키고 주형으로부터 제거하고 실온에서 12시간 동안 염이 제거되도록 세척하였다. 겔 조성물을 탈이온수중에서 70℃에서 최대 24시간까지 에이징시켰다. 겔 조성물의 일부를 용매 치환시키고 선행 실시예처럼 헤파탄에서 건조시켰다.
- <199> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어서 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.
- <200> <실시에 27>
- <201> 본 실시예에는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <202> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 2의 변형된 CB-B가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 26에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.
- <203> 변형된 CB-B를 아세톤이 있는 비이커에 분산시키고, 진공 여과를 하고 세척액의 pH가 중성에 가깝게 될 때까지 탈이온수로 반복하여 세척하였다. 이어서, 변형된 CB-B를 140℃에서 12시간 동안 건조시

켰다.

<204> 실시예 24에서처럼 변형된 CB-B를 황산과 함께 규산염 나트륨을 함유하는 용액내에 분산시켜 전체 고체 함량 중 10%가 변형된 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 변형되지 않은 CB-B와 대조적으로 변형된 CB-B의 첨가는 표면기들의 안정성에 의해 제한되었다. pH값이 3보다 클 경우에만 변형된 CB-B를 줄에 첨가하여 표면 변형을 유지할 수 있었다. 그러므로 1M의 수산화 나트륨의 첨가량을 조절하여 pH를 조심스럽게 3으로 상승시키는 적절한 양의 변형된 CB-B를 줄에 분산시켰다. 전과 같이, 줄의 pH가 5가 될 때까지 1M의 수산화나트륨 첨가를 조절하여 겔화를 수행하였다.

<205> 겔화 후 그 물질을 전과 같이 50℃에서 1-2시간 동안 에이징시키고, 주형으로부터 제거하고 실온에서 12시간 동안 염이 제거되도록 세척하였다. 이어서, 겔 조성물을 탈이온수로 70℃에서 최대 24시간까지 에이징시켰다. 이어서, 겔의 일부를 용매 치환시키고 선행 실시예처럼 햅탄에서 건조시켰다.

<206> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.

<207> <실시예 2B>

<208> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.

<209> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 3의 페놀성 CB-B가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 26에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.

<210> 페놀성 CB-B를 아세톤이 있는 비이커에 분산시키고, 진공 여과를 하고 세척액의 pH가 중성에 가깝게 될 때까지 탈이온수로 반복하여 세척하였다. 이어서, 변형된 CB-B를 140℃에서 12시간 동안 건조시켰다.

<211> 실시예 24에서처럼 페놀성 CB-B를 황산과 함께 규산염 나트륨을 함유하는 용액내에 분산시켜 전체 고체 함량 중 10%가 페놀성 CB-B이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 변형되지 않은 CB-B와 대조적으로 페놀성 CB-B의 첨가는 표면기들의 안정성에 의해 제한되었다. pH값이 3보다 클 경우에만 페놀성 CB-B를 줄에 첨가하여 표면 변형을 유지할 수 있었다. 그러므로 1M의 수산화 나트륨의 첨가량을 조절하여 pH를 조심스럽게 3으로 상승시키는 적절한 양의 페놀성 CB-B를 줄에 분산시켰다. 전과 같이, 줄의 pH가 5가 될 때까지 1M의 수산화나트륨 첨가를 조절하여 겔화를 수행하였다.

<212> 겔화 후 그 물질을 전과 같이 50℃에서 1-2시간 동안 에이징시키고, 주형으로부터 제거하고 실온에서 12시간 동안 염이 제거되도록 세척하였다. 이어서, 겔 조성물을 탈이온수로 70℃에서 최대 24시간까지 에이징시켰다. 이어서, 겔의 일부를 용매 치환시키고 선행 실시예처럼 햅탄에서 건조시켰다.

<213> 겔 조성물들의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도와 박리성은 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표4에 나타내었다.

<214> 표 4 : 규산염 나트륨 전구체 겔(카본이 50%이하)

실시예	카본블랙	양(%)	조용매	벌크밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	박리성
23	무	무	햅탄	0.20	--
24	CB-A	10	햅탄	0.22	25
25	변형된CB-A	10	햅탄	0.21	15
26	CB-B	10	햅탄	0.19	16
27	변형된CB-B	10	햅탄	0.19	7
28	페놀성CB-B	10	햅탄	0.21	25

<216> 알콕시화물 전구체 실시예 (50중량%초과(고체)충전)

<217> 실시예 29-34는 알콕시화물 전구체와 50중량%를 초과하는 탄소질 성분으로부터 제조된 겔에 관한 것이다.

<218> <실시예 29>

<219> CB-A의 양을 전체 고체 함량의 60%로 증가시키고, 에이징 및 건조단계를 변화시킨 점을 제외하고는 실시예 11에서의 공정을 반복하였다. 전과 같이, 적정량의 CB-A를 첨가하고 전체 고체함량을 유지하기 위하여 에틸알콜로 줄을 희석하였다. 겔화가 선행 실시예 5-22에서와 같은 형태로 개시되었다. 이어서, 겔을 50℃에서 24시간 동안 밀폐된 원통형 주형에서 에이징시켰다. 물로 세척하고 70℃에서 에이징하는 것 대신에 이들 겔을 처음에는 50℃에서 10시간, 이어서 140℃에서 10시간동안 모액에서 직접 건조시켰다.

<220> 생성된 제품은 대부분은 미립자를 포함하는 점착력 없는 입체이다. 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표5에 나타내었다.

<221> <실시예 30>

<222> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.

<223> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 1의 변형된 CB-A가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 29에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.



- <224> 선행 실시예에서처럼, 변형된 CB-A를 세척하고 나서 부분적으로 가수분해된 실리카 용액내에 분산시켜 전체 고체함량의 60%가 변형된 CB-A이고 나머지는 실리카로 되도록 하였다. 전과 같이, 졸을 일정한 전체 고체 함량을 유지하기 위하여 에틸 알콜로 희석을 하였고, 겔화는 유사한 형태로 개시되었다. 겔은 실시예 29에서와 같이 밀폐된 원통형 주형에서 50℃에서 24시간 동안, 이어서 140℃에서 10시간 동안 에이징시켜 모액으로부터 직접 건조시켰다. 생성된 제품은 고체 형태이고, 물리적으로 견고한 단일조각 펠렛이었다. 탄소 미립자의 양은 무시할 정도이고, 겔 제품은 실시예 29에서 변형되지 않은 탄소 물질로 만들어진 겔 제품과 비교할 때 매우 내구적이며 접착성이 있었다.
- <225> 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 절차에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표5에 나타내었다.
- <226> <실시예 31>
- <227> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <228> 변형된 CB-A의 양을 전체 고체의 70%로 증가시키고 나머지는 실리카로 하는 것을 제외하고는 실시예 30에서의 공정을 반복하였다. 전과 같이, 일정한 전체 고체 함량을 유지하기 위하여 졸을 에틸 알콜로 희석하였고 겔화는 유사한 형태로 개시시켰다. 이어서, 겔은 원통형 주형에서 50℃에서 24시간 동안 에이징시켰고, 이어서, 처음에는 50℃에서 10시간 동안, 이어서 140℃에서 10시간 동안 모액으로부터 직접 건조하였다.
- <229> 생산된 펠렛은 견고하고 파손이나 미립자의 생성없이 용이하게 취급할 수 있었다. 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표5에 나타내었다.
- <230> <실시예 32>
- <231> 본 실시예에서는 표 1에 기재된 분석 특성을 가지는 "CB-C"라고 표시한 다른 카본블랙을 사용하여 실시예 29에서 사용된 공정을 실질적으로 반복하였다.
- <232> 부분적으로 가수분해된 실리카 용액속에 CB-C를 분산시켜 전체 고체함량의 80%가 CB-C이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 전과 같이, 일정한 전체 고체 함량을 유지하기 위하여 졸을 에틸 알콜로 희석하였고 겔화는 유사한 형태로 개시되었다. 이어서 겔은 원통형 주형에서 50℃에서 24시간 동안 에이징시킨 후 처음에는 50℃에서 10시간 동안, 이어서 140℃에서 10시간 동안 모액으로부터 직접 건조하였다.
- <233> 생성된 제품은 실시예 29의 것과 유사한데, 주로 탄소 미립자로 구성된 내구성이 약하고 잘 파괴되는 겔이었다. 겔의 망상조직은 점착력이 없고 본 발명의 겔 조성물에서 볼 수 있는 구조적 완전성이 결여되어 있다.
- <234> 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표5에 나타내었다.
- <235> <실시예 33>
- <236> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <237> 본 실시예에서는 겔 조성물에 실시예 4의 변형된 CB-C가 혼입되어 있다는 점을 제외하고는 실시예 32에서의 공정을 실질적으로 반복하였다.
- <238> 선행 실시예에서처럼, 변형된 CB-C를 세척한 후, 부분적으로 가수분해된 실리카 용액내에 분산시켜 전체 고체함량의 80%가 변형된 CB-C이고 나머지는 실리카가 되도록 하였다. 전과 같이 졸을 일정한 전체 고체 함량을 유지하기 위하여 에틸 알콜로 희석하였고 겔화가 유사한 형태로 개시되었다. 겔은 원통형 주형에서 50℃에서 24시간 동안 에이징시켜 처음에는 50℃에서 10시간 동안, 이어서 140℃에서 10시간 동안 모액으로부터 직접 건조하였다.
- <239> 생산된 제품은 실시예 30 및 31에서 만들어진 것과 외형이나 완전성에서 유사한 펠렛이었다. 단지 극소량의 탄소 미립자가 존재하였고 겔은 매우 점착력이 강하였다.
- <240> 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표5에 나타내었다.
- <241> <실시예 34>
- <242> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <243> 겔 조성물에 사용된 변형된 CB-C의 양이 전체 고체 함량의 85%로 증가한 점을 제외하고는 실시예 33에서의 공정을 반복하였다. 전과 같이 적정량의 변형된 CB-C를 첨가하고 일정한 전체 고체함량을 유지하기 위하여 에틸알콜로 졸을 희석하고 겔화가 유사한 형태로 개시되었다. 이어서 겔을 50℃에서 24시간 동안 밀폐된 원통형 주형에서 에이징시키고, 이어서 처음에는 50℃에서 10시간, 그리고 140℃에서 10시간 동안 모액에서 직접 건조시켰다.
- <244> 생성된 펠렛은 파손이나 미립자의 생성없이 용이하게 취급할 수 있었다. 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표 5에 나타내었다.
- <245> <실시예 35>
- <246> 본 실시예는 겔 성분에 부착된 카본블랙을 포함하는 본 발명의 겔 조성물의 제조를 설명한다.
- <247> 겔 조성물에 사용된 변형된 CB-C의 양이 전체 고체 함량의 90%로 증가한점을 제외하고는 실시예

33에서의 공정을 반복하였다. 전과 같이, 적정량의 CB-C를 첨가하고 일정한 전체 고체함량을 유지하기 위하여 에틸알콜로 졸을 희석하고, 겔화는 유사한 형태로 개시되었다. 이어서 겔을 50℃에서 24시간 동안 밀폐된 원통형 주형에서 에이징시키고 처음에는 50℃에서 10시간, 이어서 140℃에서 10시간 동안 모액에서 직접 건조시켰다.

<248> 생성된 펠렛은 파손이나 미립자의 생성없이 용이하게 취급할 수 있다. 생성된 제품의 대표적인 샘플에 있어 벌크 밀도는 본 명세서에 기재된 방법에 따라 결정하였다. 그 결과는 아래 표 5에 나타내었다.

<249> 표 5 - 알콕시화물 전구체 겔 (탄소50%초과)

실시예	카본블랙	양(%)	건조용매	벌크밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	태양
29	CB-A	60	모액	0.53	미립자
30	변형된CB-A	60	모액	0.54	펠렛
31	변형된CB-A	70	모액	0.61	펠렛
32	CB-C	80	모액	0.66	미립자
33	변형된CB-C	80	모액	0.65	펠렛
34	변형된CB-C	85	모액	0.66	펠렛
35	변형된CB-C	90	모액	0.63	펠렛

<251> 실시예 29-35의 결과는 겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 사용하여 제조된 본 발명의 겔 조성물인 실시예 30, 31 및 33-35는 점착력을 가진 고체임을 설명한다. 이와 대조적으로 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 사용하여 제조된 겔 조성물인 실시예 29와 32는 파쇄되었다.

<252> 당업자에게 이러한 결과는 본 발명의 겔 조성물인 실시예 30, 31 및 33-35가 파쇄되는 실시예 29 및 32의 겔 조성물과 비교하여 흡착제로 사용하기에는 더 유용하다는 것을 나타내었다.

<253> <결과의 요약>

<254> 전체적으로, 선행 실시예로부터 얻은 SEM과 박리성 자료는 본 발명의 겔 조성물에서 탄소질 성분(변형된 CB-A, 변형된 CB-B, 페놀성 CB-B 및 변형된 CB-C)이 겔 성분에 부착됨을 설명한다.

<255> 특히, 겔 성분에 부착된 탄소성분을 가지는 실시예 12-17, 19-20, 22, 25 및 27-28에서 제조된 본 발명의 겔 조성물은 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 가지는 실시예 6-11, 18, 21, 24 및 26에서 제조된 비교 겔 조성물보다 박리성이 낮다. 비록 자료는 언급되지 않았지만, 겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 가지는 실시예 30-31 및 33-35에서 제조된 본 발명의 겔 조성물은 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 가지는 실시예 29 및 32에서 생성된 겔 조성물과 비교하였을 때 유사한 결과가 기대된다.

<256> 이와 유사하게, SEM사진, 특히, 실시예 14의 본 발명의 겔 조성물의 도 3, 실시예 19의 본 발명의 겔 조성물의 도 5, 실시예 20의 본 발명의 겔 조성물의 도 6, 실시예 22의 본 발명의 겔 조성물의 도 8은 본 발명의 겔 조성물내에서 변형된 카본블랙이 실리카겔 성분에 부착됨을 설명한다. 도 3, 5, 6 및 8에 나타나 있는 바와 같이, 부착된 탄소질 성분(변형된 카본블랙)이 이들 겔 조성물의 단면 표면 SEM사진에서 뚜렷한 응집을 나타내는 것은 극소량이거나 없다. 이러한 결과는 변형된 카본블랙이 실리카 겔 성분의 여러 위치에 부착되고, 카본블랙에 대한 실리카 결합이 겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 포함하지 않는 종래의 겔 조성물에서의 실리카들 간의 결합보다 강하다는 것을 나타낸다.

<257> 이와 대조적으로 도 2, 4 및 7에 나타나 있는 바와 같이 겔 성분에 부착되지 않은 탄소질 성분을 포함하는 겔 조성물의 단면 표면 SEM사진은 뚜렷한 카본블랙의 응집을 보인다. 이들 겔 조성물에서 카본블랙은 실리카겔 성분에 부착되지 않는다. 본 명세서에서 언급하고 있는 본 발명의 태양은 단지 설명을 위함이지 본 발명의 범위를 제한하려는 것은 아니라는 사실을 분명히 이해해야 한다.

## (57) 청구의 범위

### 청구항 1

카본 블랙, 탄소 섬유, 활성 탄소 및 흑연 탄소를 이루어진 군에서 선택된 탄소질 성분, 및 금속 산화물 겔을 포함하고, 상기 탄소질 성분에는 a) 1 이상의 방향족기 또는 1 이상의 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> 알킬기, 및 b) 1 이상의 이온기, 1 이상의 이온화 가능기, 또는 이온기와 이온화 가능기의 혼합물을 포함하는 1 이상의 유기기가 부착되어 있고, 상기 유기기의 방향족기 또는 알킬기 중 적어도 하나는 상기 탄소질 성분에 직접 부착되어 있는 겔 조성물.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 탄소질 성분이 카본 블랙인 겔 조성물.

### 청구항 3

제2항에 있어서, 금속 산화물 겔이 실리카인 겔 조성물.

### 청구항 4

제1항에 있어서, 금속 산화물 겔이 실리카, 티타니아, 알루미늄, 또는 이들의 혼합물을 포함하는

것인 겔 조성물.

#### 청구항 5

제4항에 있어서 금속 산화물 겔이 실리카인 겔 조성물.

#### 청구항 6

제1항에 있어서, 유기기가 술포페닐기 또는 그의 염, 카르복시페닐기 또는 그의 염, 또는 이들의 혼합물을 포함하는 것인 겔 조성물.

#### 청구항 7

제6항에 있어서, 유기기가 p-술포페닐기 또는 그의 염을 포함하는 것인 겔 조성물.

#### 청구항 8

제1항에 있어서, 이온기 또는 이온화 가능기가 카르복실산 또는 그의 염, 술포산 또는 그의 염, 4급 암모늄 염, 또는 이들의 혼합물을 포함하는 것인 겔 조성물.

#### 청구항 9

제8항에 있어서, 이온기 또는 이온화 가능기가 에탄 술포산 또는 그의 염인 겔 조성물.

#### 청구항 10

제1항에 있어서, 탄소질 성분이 조성물의 1-50 중량%를 차지하는 겔 조성물.

#### 청구항 11

제10항에 있어서, 탄소질 성분이 조성물의 10-20 중량%를 차지하는 겔 조성물.

#### 청구항 12

제1항에 있어서, 탄소질 성분이 조성물의 50-99 중량%를 차지하는 겔 조성물.

#### 청구항 13

제12항에 있어서, 탄소질 성분이 조성물의 75-85 중량%를 차지하는 겔 조성물.

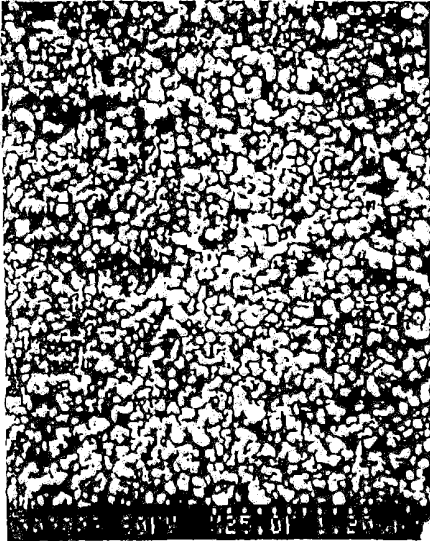
#### 청구항 14

제1항 내지 제8항 중 어느 한 항의 겔 조성물을 포함하는 단열재.

### 요약

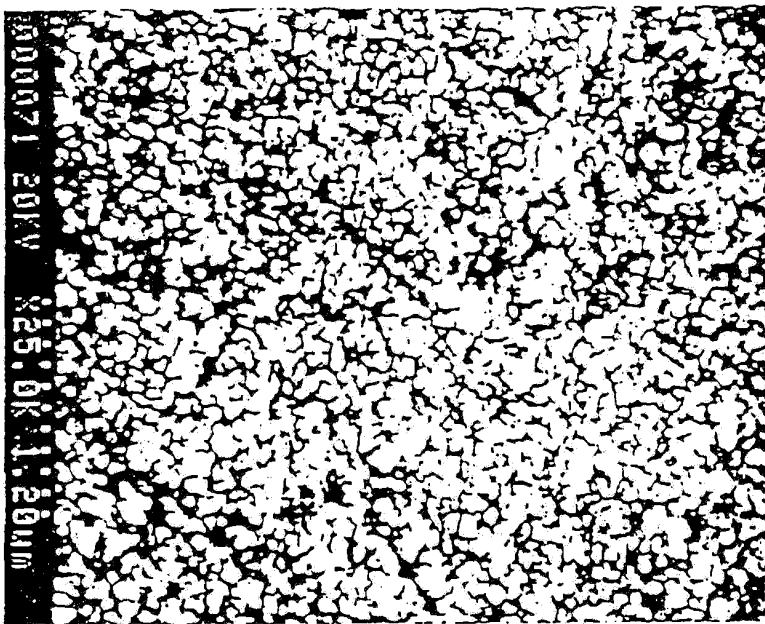
겔 성분에 부착된 탄소질 성분을 포함하는 새로운 겔 조성물. 바람직하게는, 탄소질 성분은 카본 블랙, 탄소 섬유, 활성 탄소 및 흑연 탄소를 이루어진 군에서 선택되고, 겔 성분은 금속 산화물겔 및 중합체겔로 이루어진 군에서 선택된다. 또한, 겔 성분과 a) 적어도 하나의 방향족기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 이온화 가능기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고 유기기 중 적어도 하나의 방향족기가 카본 블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물이 개시되어 있다. 또한, 겔 성분과 a) 적어도 하나의 C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> 알킬기 및 b) 적어도 하나의 이온기, 이온화 가능기 또는 이온기 및 이온화 가능기의 혼합물을 포함하고 유기기 중 적어도 하나의 알킬기가 카본블랙에 직접 부착되어 있는 적어도 하나의 부착 유기기를 갖는 카본블랙 제품을 포함하는 새로운 겔 조성물이 개시되어 있다. 겔 조성물의 용도들에 관해서도 개시되어 있다.

대표도

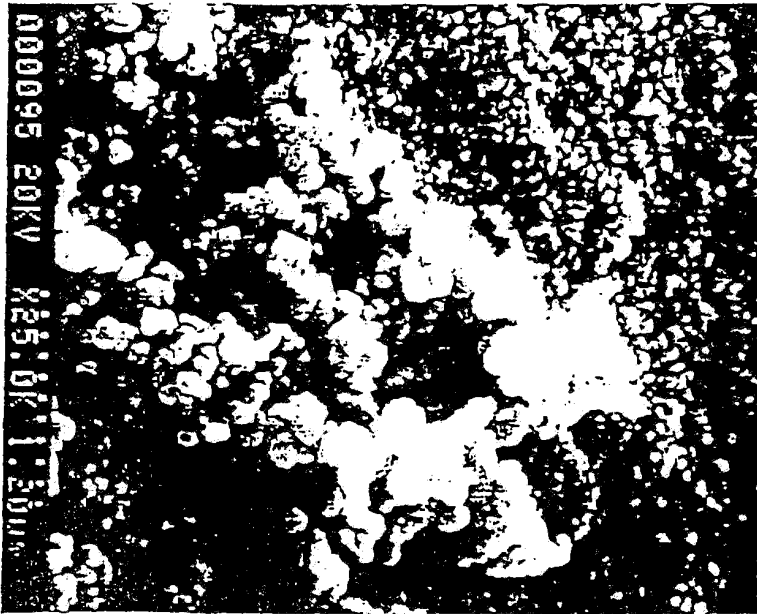


도면

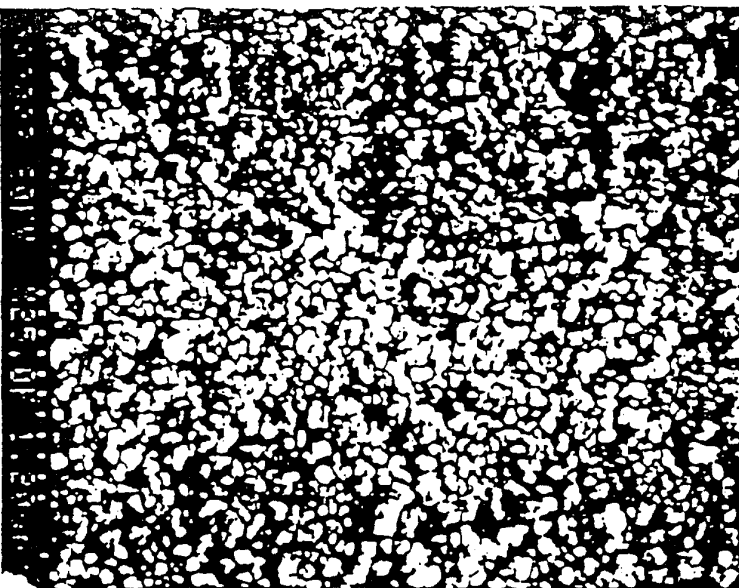
도면1



도면2

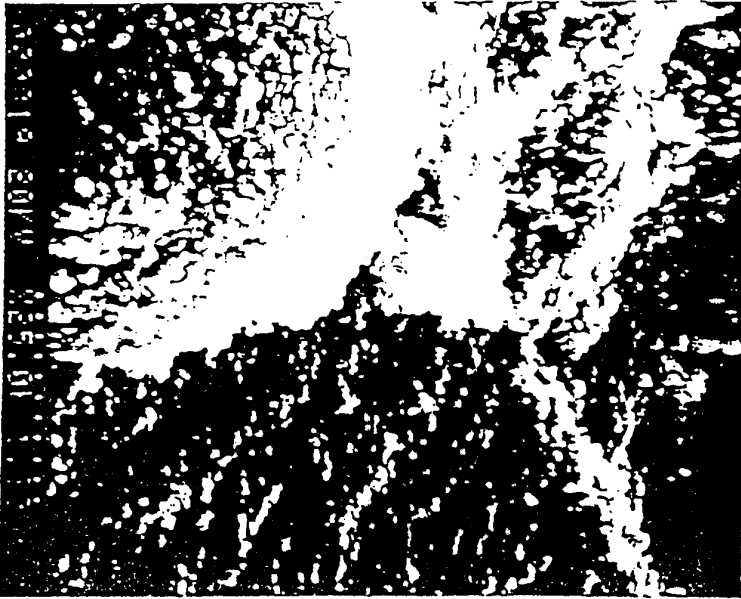


도면3

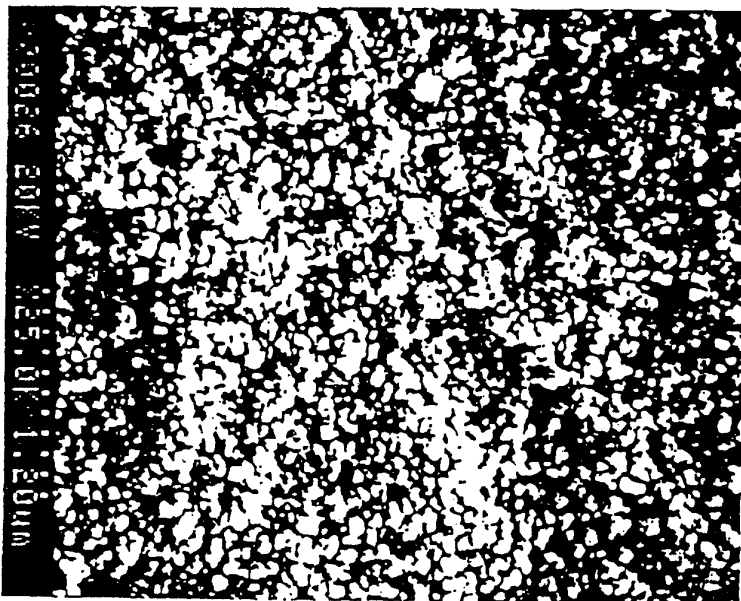




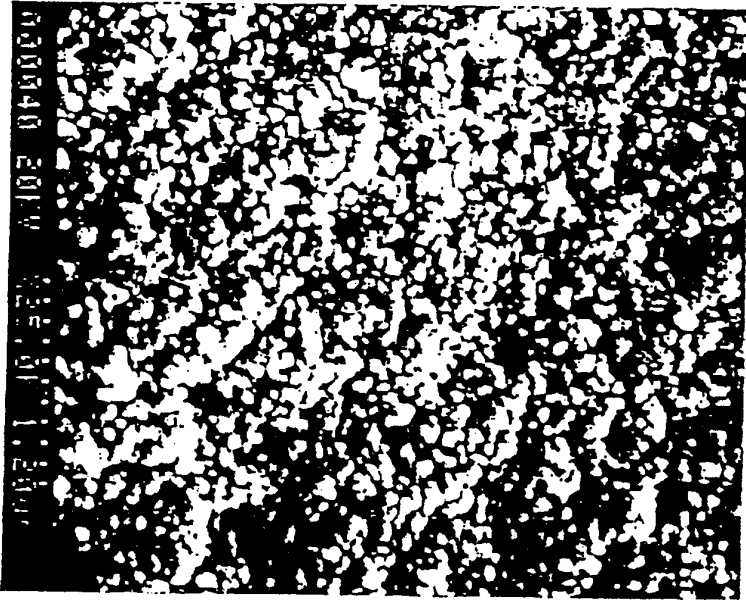
도면4



도면5



도면6



도면7



도면8

