(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2010-0098111
(43) 공개일자 2010년09월06일

(51) Int. Cl.
C01B 31/02 (2006.01) *C01B 31/00* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2009-0017124
(22) 출원일자 2009년02월27일
심사청구일자 2009년02월27일

(71) 출원인
경희대학교 산학협력단
경기도 용인시 기흥구 서천동 1 경희대학교 국제캠퍼스내
(72) 발명자
안정선
서울 서초구 잠원동 대림아파트 7동 305호
여승준
서울 서초구 잠원동 신반포한신아파트 103동 1003호
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
오세중

전체 청구항 수 : 총 4 항

(54) 플러렌 다량체의 제조방법

(57) 요 약

본 발명은 백색발광 특성을 갖는 플러렌 다량체를 제조하기 위한 플러렌 회합체의 제조방법에 관한 것으로, 특히 플러렌 단량체 분말을 진공 중에서 열에 의해 승화시키는 과정에서 플러렌 분자의 단열팽창에 의해 플러렌 단량체의 운동에너지가 낮아지면서 분자운동에너지가 둔화되고, 분자간의 반데르발스력에 의해 플러렌 단량체간의 결합으로 플러렌 회합체가 생성되며, 그 생성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 상호간의 중합반응을 유도하여 플러렌 다량체를 제조하는 플러렌 다량체 제조방법을 제공한다.

(72) 발명자

차정옥

서울 양천구 신정5동 927-58

박소라

서울 동대문구 장안1동 216-36호

조정연

경기 남양주시 진접읍 장현3리 가-301

조대희

서울특별시 강남구 신사동 현대1차 아파트 102동 402호

특허청구의 범위

청구항 1

플러렌 단량체 분말을 진공상태에서 일부분이 개방된 용기 내부에 담고 열을 가하여 승화시키는 단계와;

상기 승화되는 플러렌 단량체 분말이 상기 용기의 개방된 부분으로 유출되어 진공상태에서 단열팽창하도록 하는 단계와;

상기 단열팽창된 플러렌 단량체 분말이 반데르발스력에 의해 분자간 결합하여 플러렌 회합체가 생성되도록 하는 단계와;

상기 생성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 중합반응을 유도하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 플러렌 다량체 제조방법.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 용기에 가해지는 온도는,

400℃ 내지 450℃인 것을 특징으로 하는 플러렌 다량체의 제조방법.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 진공상태는 10^{-6}Torr 이하로 유지하는 것을 특징으로 하는 플러렌 다량체의 제조방법.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 전자빔의 세기는 100~500eV인 것을 특징으로 하는 플러렌 다량체 제조방법.

명 세 서

발명의 상세한 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 백색발광 특성을 갖는 플러렌 다량체를 제조하기 위한 플러렌 회합체의 제조방법에 관한 것으로, 특히 플러렌 단량체 분말을 진공 중에서 열에 의해 승화시키는 과정에서 플러렌 분자의 단열팽창에 의해 플러렌 단량체의 운동에너지가 낮아지면서 분자운동에너지가 둔화되고, 분자간의 반데르발스력에 의해 플러렌 단량체간의 결합으로 플러렌 회합체가 생성되며, 그 생성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 상호간의 중합반응을 유도하여 플러렌 다량체를 제조하는 플러렌 다량체 제조방법을 제공한다.

배 경 기 술

[0002] 플러렌은 탄소로만 구성된 물질이며, 그 구조는 그라파이트 구조와 다이아몬드 구조와의 중간적인 것으로, 탄소의 6원환을 중심으로 하여, 1부에 5원환이 존재한다. 플러렌의 탄소 원자의 일부를 다른 원소로 치환하거나, 플러렌에 다른 원소를 부가한 물질들도 알려져 있다. 더욱이 공모양의 플러렌의 내부에 금속원자 등을 내포시킨 물질, 플러렌 분자간에 산소가 포함된 금속 등의 이원소를 배치한 것들도 알려져 있다.

[0003] 대표적인 플러렌은 C_{60}이며, 이외에 C_{70}, C_{76}, C_{78}, C_{82}, C_{84}, C_{240}, C_{540}, C_{720} 등이 알려져 있다. 이것들은 속이 비어 있는 볼(ball) 상태의 플러렌이다. 또한 이외에 튜브상태의 플러렌이 알려져 있다. 볼과 튜브상태의 플러렌에서, 중요한 것은 볼 상태의 플러렌이며, 이하에서는 플러렌은 볼 상태의 플러렌을 중심으로 설명한다.

[0004] 상기 플러렌은 용액이나 단결정 등으로 존재하며, 플러렌을 용해시키는 용매로는 벤젠, 톨루엔, CS2, 아세톤, 트리클로로에틸렌, 클로로벤젠 등이 있다. 용액에서도 단결정에서도 플러렌은 회전의 자유도를 가진다. 예를 들

면, 실온의 단결정에서는 플러렌 분자, 즉 플러렌 단량체는 병진자유도를 빼앗기고 있을 뿐, 열 운동에 의해 회전하고 있다.

[0005] 이것은 플러렌이 등방(等方)적인 볼 상태로 플러렌 분자 상호간의 결합이 약하고, 또한 결합의 포텐셜의 이방성이 작은 것과 관련되어 있다. 따라서 고체 내에서 플러렌 분자간의 결합은, 주로 파이 전자간의 상호작용에 의거한 반데르발스 결합이다.

[0006] 플러렌을 응용한 것의 하나로 리소그라피가 주목되고 있다. 플러렌에는 승화성이 있으며, 박막을 형성할 수 있으므로 이 박막에 잠상(潛像)을 형성한 후에 현상을 할 수 있다면, 리소그라피에의 응용이 가능하다.

[0007] 종래의 플러렌 회합체를 형성하는 방법은, 톨루엔, 벤젠, CS2 등의 단일용매에 용해된 플러렌 용액의 동결과정에서 자연 발생적으로 회합체를 생성하거나, 플러렌을 용해시키는 용액과 플러렌을 용해시키기 어려운 난용매를 혼합하여 상온에서 용액 내부에서 플러렌 회합체를 만드는 방법을 사용하였다.

[0008] 그러나, 단일용매에서 형성된 플러렌 회합체에 UV 레이저를 조사하여 광중합 반응을 유도하여 플러렌 다량체를 형성하는 경우에, 용액이 동결된 상태에서 빛을 조사하여야 하기 때문에 상기 플러렌 회합체로부터 얻어지는 백색발광 특성을 갖는 플러렌 다량체의 양이 극히 적다는 문제점이 있었다.

[0009] 또한, 상온에서 난용매를 이용하여 형성된 플러렌 회합체의 경우에는 그 크기가 수백 나노미터 크기를 가지므로 백색발광 특성을 갖는 3차원 구조의 플러렌 다량체를 형성하기 어렵다는 문제점도 있었다.

[0010] 상기 문제점들을 해결하기 위하여, 본 출원인은 플러렌 단량체를 단일용매에 용해시킨 플러렌 용액을 마이크로미터 크기의 용액 방울로 분무한 후, 상기 분무된 플러렌 용액 방울을 진공상태에서 자연증발시켜 플러렌 회합체를 형성하고, 상기 형성된 플러렌의 회합체에 레이저 빔을 조사하여 플러렌 회합체간의 중합반응을 유도하여 플러렌 다량체를 제조하는 방법을 출원한 바 있다.

[0011] 그러나, 상기 플러렌 다량체 제조방법 역시 플러렌 단량체를 용매에 녹인 후, 마이크로 분무법에 의해 분무하여 진공상태에서 자연증발 시키는 등 별도의 용매가 필요하고, 플러렌 다량체를 제조한 후 용매를 증발시켜야만 플러렌 다량체를 얻을 수 있어 그 과정이 복잡하다는 문제점이 있었다.

[0012] 또한, 마이크로 분무법을 이용할 경우 장치의 크기에 제한이 있어 수 마이크로 그램의 단량체를 사용하기 때문에 대량의 플러렌 다량체를 얻을 수 없다는 문제점도 있었다.

발명의 내용

해결 하고자하는 과제

[0013] 상기 문제점들을 해결하기 위하여 본 발명은, 플러렌 단량체 분말을 진공상태에서 일부분이 개방된 공간을 갖는 용기에서 열에 의해 승화시키고, 용기 밖으로 빠져나간 플러렌 단량체가 단열팽창에 의한 분자운동 저하로 인해 상대적으로 커진 반데르발스력에 의해 플러렌 단량체 분자간의 결합으로 플러렌 회합체를 형성하도록 하고, 상기 형성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 중합반응을 유도하여 플러렌 다량체를 제조하는 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

[0014] 또한, 상기 플레렌 다량체 제조방법을 제공함으로써 용매를 사용하지 않고 플러렌 다량체를 제조할 수 있도록 하는 것을 다른 목적으로 한다.

[0015] 또한, 상기 형성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하는 것만으로 플러렌 다량체를 제조함으로써 플로렌 다량체의 제조 공정을 단순화하고, 단시간 내에 다량의 플러렌 다량체를 얻을 수 있도록 하는 것을 또 다른 목적으로 한다.

과제 해결수단

[0016] 상기 목적을 달성하기 위하여 본 발명은, 플러렌 단량체 분말을 진공상태에서 일부분이 개방된 용기 내부에 담고 열을 가하여 승화시키는 단계와; 상기 승화된 플러렌 단량체 분말이 상기 용기의 개방된 부분으로 유출되어

진공상태에서 단열팽창하도록 하는 단계와; 상기 단열팽창된 플러렌 단량체 분말이 반데르발스력에 의해 분자간 결합하여 플러렌 회합체가 생성되도록 하는 단계와; 상기 생성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 중합반응을 유도하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 플러렌 다량체 제조방법을 제공한다.

효 과

[0017] 상술한 바와 같이 본 발명에 따른 플러렌 다량체 제조방법은 용매 없이 플러렌 단량체 분말을 사용함으로써 제조공정이 단순하고, 단시간 내에 플러렌 다량체를 제조할 수 있다.

[0018] 또한, 플러렌 단량체 분말을 승화시켜 진공상태에서 플러렌 다량체를 제조함으로써 플러렌 단량체를 기본 입자로 하는 3차원 구조체를 얻을 수 있다.

[0019] 또한, 전자빔을 사용함으로써 더 많은 플러렌 단량체 분자가 결합한 새로운 형태의 플러렌 다량체를 얻을 수 있다.

발명의 실시를 위한 구체적인 내용

[0020] 본 발명의 플러렌 다량체 제조방법은, 플러렌 단량체 분말을 상부의 일부가 미세하게 개방된 용기(Effusion Cell, 이하 EC라 함)에 담는 단계와; 상기 플러렌 단량체 분말이 담긴 EC를 전자 방출원(Electron beam source)이 장착된 진공챔버 장착하고 상기 EC에 열을 가하는 단계와; 상기 가해진 열에 의해 EC 내부의 플러렌 단량체가 승화하여 EC의 개방된 부분으로 플러렌 단량체 분자가 유출되도록 하는 단계와; 상기 유출된 플러렌 단량체 분말이 진공상태에서 단열팽창하도록 하고, 그 단열팽창 과정에서 플러렌 단량체 분자의 운동에너지를 낮추고 상대적으로 커진 반데르발스력에 의해 플러렌 분자간 결합을 유도하여 플러렌 회합체를 형성하는 단계와; 상기 생성된 플러렌 회합체에 전자빔을 조사하여 중합반응을 유도하고, 그 중합반응에 의해 플러렌 다량체를 생성하는 단계로 구성된다.

[0021] 상기와 같이 본 발명의 플러렌 다량체 제조방법에 사용되는 플러렌 단량체는시중에서 구입할 수 있는 Buckey Co., Inc.에서 생산한 99.995% 이상의 고순도를 갖는 플러렌 분말을 사용한다.

[0022] 또한, 상기 EC는 열을 가해 온도를 상승시킬 수 있는 용기를 사용하며, 그 용기 상부의 개방된 부분은 승화된 플러렌 단량체 분자가 유출될 수 있으며, 유출된 플러렌 단량체 분말이 단열팽창하기에 최적의 조건으로 형성한다.

[0023] 상기 플러렌 단량체 분말을 이용한 플러렌 다량체 제조방법의 한 실시예로서, 플러렌 단량체 약 1 내지 10mg을 상단 일부분이 미세하게 개방된 용기(EC)에 넣는다. 다음에 상기 용기 상부에 실리콘(Si), Quartz, KBr 혹은 CsI 등으로 제조된 기판을 설치한다. 상기 기판의 종류에 따라 기판에 부착된 플러렌 다량체의 특성이 다를 수 있다. 이때, 플러렌 다량체의 특성은 실리콘 기판의 경우는 XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy / X-선 광전자분광기), UPS(Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy / UV 광전자분광기), AFM(Atomic Force Microscope or Microscopy / 원자현미경) 등으로 측정하고, Quartz 기판은 UV 흡수 스펙트럼, SEM(Scanning Electron Microscope / 주사전자현미경), AFM 등에 의해, 그리고 KBr, CsI 기판은 FT-IR(Fourier Transform - Infrared Spectroscopy / 적외선분광기)에 의해 측정할 수 있다.

[0024] 이때, 상기 용기와 기판 사이에는 승화된 플러렌 단량체와 단열팽창과정에서 생성된 플러렌 회합체, 그리고 전자빔에 의해 생성된 플러렌 다량체가 진공챔버 내부로 분산되는 것을 방지하기 위해 실린더를 설치하며, 상기 실린더의 상단 즉 기판이 인접한 부분에서는 냉각장치를 설치하여 플러렌 다량체를 쉽게 포집할 수 있도록 한다.

[0025] 다음에, 상기 용기 등이 설치되는 진공 챔버 내부는 10^{-6} torr 이하의 진공도를 갖도록 유지한다. 상기 진공챔버 내부를 10^{-6} torr 이하로 유지하는 이유는 챔버내부에 존재하는 산소 등 활성 기체를 최소화하고, 조사되는 전자빔이 플라즈마 타입이기 때문에 플라즈마 생성 조건 (10^{-4} torr 이하)을 유지하기 위한 것이다.

[0026] 다음에, 상기 챔버 내부에 용기(EC)를 안치하고, 그 용기의 온도를 플러렌 단량체를 승화시키기 위해 400도℃

내지 450℃로 유지한다. 상기 용기의 온도를 400℃ 이상으로 가열하여도 괜찮지만 그럴 경우 플러렌의 승화 속도가 너무 빨라 EB(전자빔)와 제대로 반응하기 전에 기판이나 포집용 실린더 내부에 붙게 되어 플러렌 다량체의 생성률이 떨어질 수 있으므로 450℃이상은 상승시키지 않는다.

[0027] 다음에, 상기 용기의 온도를 상승시키면서 전자빔을 지속적으로 조사한다. 이때, 상기 전자빔의 세기는 500eV를 유지한다. 상기 전자빔의 세기 500eV는 한 실험의 실시예일 뿐이며, 100eV~500eV 혹은 장치의 업그레이드를 통하여 더 큰 세기의 EB을 조사 할 수도 있다.

[0028] 다음에, 상기 플러렌 단량체 분말이 모두 승화되기까지 상기의 조건을 유지한다. 상기 실험에서 용기의 온도가 400도℃로 유지되는 경우 2mg을 승화시키는데 약 8시간 전후가 소요된다.

[0029] 상기와 같이 플러렌 단량체 분말이 승화된 후, 플러렌 다량체는 각 기판 또는 냉각수단이 설치된 실린더 부분에 부착된 플러렌 다량체를 용액에 녹여 수거한다.

[0030] 상기와 같이 본 발명은 플러렌 분말에 열을 가한 후, 전자빔을 조사하는 것 만으로 원하는 양의 플러렌 다량체를 제조할 수 있다.

[0031] 이상과 같이 본 발명을 실시예를 참고하여 설명하였으나, 이는 발명을 설명하기 위한 것일 뿐이며, 본 발명이 속하는 기술 분야의 통상의 지식을 가진 자라면 발명의 상세한 설명으로부터 다양한 변형 또는 균등한 실시예가 가능하다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 따라서 본 발명의 진정한 권리범위는 특허청구범위의 기술적 사상에 의해 결정되어야 한다.