



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0121269
(43) 공개일자 2024년08월08일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 21/082 (2006.01) B01J 21/18 (2006.01)
B01J 23/745 (2006.01) B01J 27/24 (2006.01)
B01J 35/39 (2024.01) C01B 25/37 (2006.01)
C01B 3/00 (2006.01) C25B 11/087 (2021.01)
(52) CPC특허분류
C01B 21/0828 (2013.01)
B01J 21/18 (2024.01)
(21) 출원번호 10-2024-7022258
(22) 출원일자(국제) 2022년12월02일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년07월03일
(86) 국제출원번호 PCT/AT2022/060424
(87) 국제공개번호 WO 2023/102584
국제공개일자 2023년06월15일
(30) 우선권주장
A50989/2021 2021년12월10일 오스트리아(AT)

(71) 출원인
하이드로솔리드 게엠베하
오스트리아 빌헬름스부르크 지틀레르슈트라세 31
(우: 3150)
(72) 발명자
스마즈라츠, 머쿠르
독일 30853 랑겐하겐 로베르트-코흐-슈트라세 42
렌츠, 미하엘
오스트리아 2325 험베르크 에르버프로메나드 7아
(74) 대리인
특허법인(유)남아이피그룹

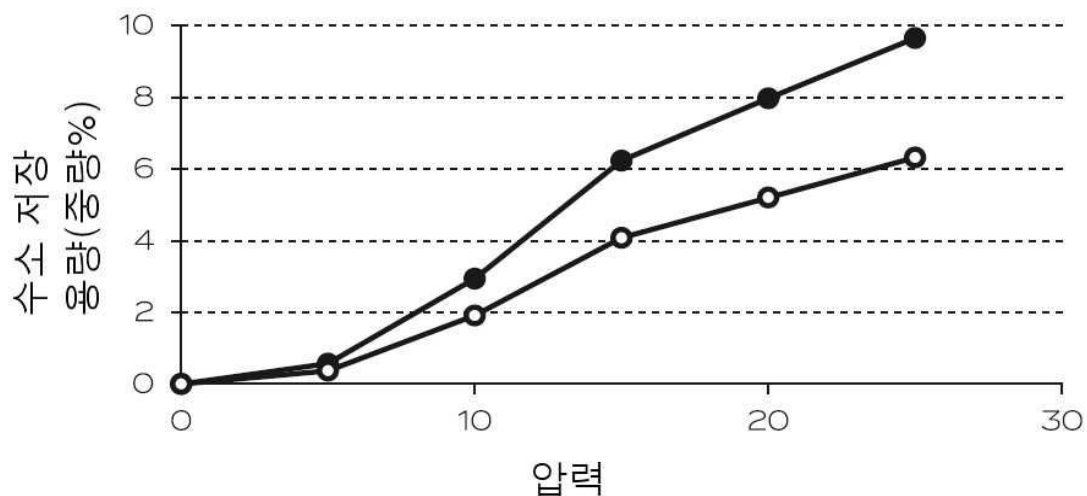
전체 청구항 수 : 총 17 항

(54) 발명의 명칭 G-C₃N₄/금속 복합 물질로부터 나노플레이크를 제조하는 방법

(57) 요약

본 발명은 g-C₃N₄/금속 복합 물질 나노플레이크를 제조하는 방법으로서, (a) FePO₄, 우레아 및 폴리아크릴니트릴을 포함하거나 이로 구성된 출발 물질을 제공하는 단계로서, 출발 물질은 100 nm 미만의 평균 입자 크기를 갖는 입자를 갖는 분말의 형태인, 단계, (b) 용매에 출발 물질을 분산시키는 단계로서, 용매는 물인, 단계, (c) 용매를 제거하여 출발 물질을 함유하는 예비혼합물을 형성시키는 단계, (d) 예비혼합물을 가열하고 예비혼합물을 200 °C 내지 700 °C, 바람직하게는 400 °C 내지 600 °C의 열분해 온도에서 열분해시켜 벌크 g-C₃N₄ 금속 복합 물질을 형성시키는 단계, (e) 벌크 g-C₃N₄ 금속 복합 물질을 초음파로 처리하여 g-C₃N₄ 금속 복합 물질 나노플레이크를 형성시키는 단계를 포함하는, 방법에 관한 것이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

B01J 23/745 (2013.01)

B01J 27/24 (2013.01)

B01J 35/39 (2024.01)

C01B 25/375 (2013.01)

C01B 3/0078 (2013.01)

C25B 11/087 (2021.01)

C01P 2004/64 (2013.01)

Y02E 60/36 (2020.08)

명세서

청구범위

청구항 1

$g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 제조하는 방법으로서, 상기 방법은 하기 단계들:

a. 철 화합물, $g-C_3N_4$ 전구체 물질 및 폴리머를 포함하거나 이로 구성된 출발 물질을 제공하는 단계로서,

i. 상기 철 화합물은 $FePO_4$ 이고,

ii. 상기 $g-C_3N_4$ 전구체 물질은 우레아이고,

iii. 상기 폴리머는 폴리아크릴로니트릴이고,

상기 출발 물질은 100 nm 미만의 평균 입자 크기를 갖는 입자를 갖는 분말 형태인, 단계,

b. 상기 출발 물질을 용매에 분산시키는 단계로서, 상기 용매는 물인, 단계,

c. 상기 용매를 제거하여 상기 출발 물질을 함유하는 예비혼합물을 형성시키는 단계,

d. 상기 예비혼합물을 가열하고 상기 예비혼합물을 200℃ 내지 700℃, 바람직하게는 400℃ 내지 600℃의 열분해 온도에서 열분해시켜 벌크 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 형성시키는 단계, 및

e. 상기 벌크 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 초음파로 처리하여 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 형성시키는 단계를 포함하는, 방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 단계 (a)에서 철 화합물의 양은 출발 물질의 총량에 대해 1.0 wt% 내지 20 wt%인 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 단계 (b)에서 분산은 80℃ 내지 100℃, 바람직하게는 90℃ 내지 100℃의 온도에서, 및 선택적으로 초음파 처리로 수행되는 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 단계 (d)에서 열분해 온도로 가열하는 동안 가열 속도는 5℃/min 이상인 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 단계 (d)에서 열분해 온도는 대략 450℃이거나, 단계 (d)에서 열분해 온도는 대략 550℃인 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 방법은 단계 (d) 후에 하기 추가 단계:

- $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질에서 철을 환원시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 단계 (a)에서 추가의 금속 화합물이 첨가되고, 상기 추가의 금속 화합물은 알루미늄, 리튬, 마그네슘, 티탄, 니켈, 백금, 팔라듐 및 바나듐 화합물 또는 이들 화합물의 임의의 혼합물로부터 선택되는 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 8

제7항에 있어서, 단계 (a)에서 추가 금속 화합물의 양은 출발 물질의 총량에 대해 0.5 wt% 내지 5.0 wt%, 바람직하게는 대략 1.0 wt%인 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 9

제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, 단계 (d)에서 열분해는 불활성 가스 분위기, 특히 질소 분위기에서 수행되는 것을 특징으로 하는, 방법.

청구항 10

$g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 제조하는 방법으로서, 하기 단계들:

- a. 200℃ 내지 700℃, 바람직하게는 400℃ 내지 600℃의 열분해 온도에서 $g-C_3N_4$ 전구체 물질 및 폴리머의 혼합물의 열분해에 의해 $g-C_3N_4$ 를 제공하는 단계로서,
- i. 상기 C_3N_4 전구체 물질은 우레아이고,
- ii. 상기 폴리머는 폴리아크릴로니트릴인, 단계,
- b. 상기 $g-C_3N_4$ 를 철 화합물과 혼합하여 예비혼합물을 수득하는 단계로서, 상기 철 화합물은 산화철, 황화철, 인화철, 질화철 또는 이들의 임의의 혼합물로부터 선택되는, 단계,
- c. 상기 예비혼합물을 100 nm 미만의 입자 크기로 분쇄하는 단계, 및
- d. 400℃ 내지 600℃의 온도에서 상기 분쇄된 예비혼합물을 처리하여 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 형성시키는 단계를 포함하는, 방법.

청구항 11

제1항 내지 제9항 중 어느 한 항에 따른 방법 및/또는 제10항에 따른 방법에 의해 수득될 수 있는 나노플레이크 형태의 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질.

청구항 12

제11항에 있어서, 100 nm 미만의 평균 기공 크기를 갖는 기공을 포함하는, 복합 물질.

청구항 13

제11항 또는 제12항에 있어서, 표면 상에 철 및/또는 철 화합물이 담지된 $g-C_3N_4$ /나노플레이크가 제공되고, 상기 철 및/또는 상기 철 화합물은 100 nm 미만의 입자 직경을 갖는 미립자 형태인 것을 특징으로 하는, 복합 물질.

청구항 14

제11항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 포함하거나 이로 구성되는, 수소 저장 물질.

청구항 15

제11항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 포함하거나 이로 구성되는, 물 전기분해를 위한 전기촉매.

청구항 16

제11항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 포함하거나 이로 구성되는, 물 전기분해를 위한 광촉매.

청구항 17

제11항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 포함하거나 이로 구성되는, 물 전기분해를 위한 광전기촉매.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 특허 독립항 제1항의 특징에 따라 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질로부터 나노플레이크를 제조하는 방법에 관한 것이다. 본 발명은 추가로 이러한 방법에 의해 수득될 수 있는 나노플레이크, 수소 저장 물질, 및 본 발명에 따른 나노플레이크를 함유하는 광촉매, 광전기촉매 및 전기촉매에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] $g-C_3N_4$ 로도 지칭되는 흑연질 질화탄소는, 최신 기술에 따라, 다양한 적용 분야, 예를 들어, 불균질 촉매 적용을 위해 또는 분자 수소를 위한 저장 물질로서 사용되는 폴리머 물질이다. 순수한 $g-C_3N_4$ 는 금속 또는 금속 화합물과의 복합 물질의 형성에 의해 성질이 맞춤화되고 개선되는 금속-비합유 화합물이다.

[0003] 그러나, 공지된 $g-C_3N_4$ 금속 복합 물질의 성능 특징, 특히 수소의 저장 및 물로부터 수소 및 산소의 광촉매 생산에 대해서는 불충분하다. 특히, 수소에 대한 저장 용량 및/또는 달성 가능한 수소 생산 속도는 개선을 필요로 하는 공지된 $g-C_3N_4$ /금속 복합제의 인자이다.

발명의 내용

[0004] 따라서, 본 발명의 목적은 공지된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 단점을 극복하는 것이다. 특히, 본 발명의 한 가지 목적은 다음 성능 특징 중 적어도 하나와 관련하여 개선된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 제공하는 것이다: 수소에 대한 저장 용량, 수소에 대한 흡착 용량, 수소 생산 속도, 광전기촉매 및 물의 전기분해에서 달성 가능한 전류 밀도.

[0005] 본 발명의 맥락에서, 놀랍게도 이러한 목적 및 다른 목적은 특히 본 발명에 따른 방법에 의해 제조된 복합 물질에 의해 달성될 수 있는 것으로 밝혀졌다.

[0006] 본 발명은 여러 단계를 포함하는 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 제조하는 방법에 관한 것이다.

[0007] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (a)가 제공된다: 철 화합물, $g-C_3N_4$ 전구체 물질 및 폴리머를 포함하거나 이로 구성된 출발 물질을 제공하는 단계. 철 화합물은 인산철(III)일 수 있다. $g-C_3N_4$ 전구체 물질은 우레아(CH_4N_2O)일 수 있다. 폴리머는 폴리아크릴로니트릴일 수 있다. 특히, 출발 물질은 입자가 100 nm 미만의 평균 입자 크기를 갖는 분말이다.

[0008] 출발 물질에서 폴리아크릴로니트릴의 사용은 특히 유리한 성질을 갖는 나노플레이크가 수득되게 하는 것으로 밝혀졌다. 이러한 이론으로 국한되지 않으면서, 폴리아크릴로니트릴은 생산된 나노플레이크의 기하학적 파라미터, 특히 길이, 폭, 모양, 및 배향에 유의하게 영향을 미치는 주형을 형성시키는 것으로 추정된다.

[0009] 선택적으로, 폴리아크릴로니트릴의 추가의 유리한 기술적 효과는 폴리아크릴로니트릴의 고리화가 공정의 일부로서 일어날 수 있고, 이에 의해 전도체 폴리머가 형성되는데, 이것이 특히 화학적, 열적, 및 기계적 안정성과 관련하여 특정 안정성을 갖는 $g-C_3N_4$ 물질을 제공한다는 것이다. 예를 들어, 폴리아크릴로니트릴의 사용은 개선된 내염성, 내화성 및 내열성을 갖는 복합 물질을 제공할 수 있으며, 이는 잠재적 옥시하이드로젠 가스 혼합물 형성 및 수소 가스 연소가 복합 물질을 점화시킬 수 없기 때문에 수소를 수반하는 적용에서 특히 유리하다.

[0010] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (b)가 제공된다: 출발 물질을 용매에 분산시키는 단계로서, 용매는 특히 물인, 단계. 선택적으로, 물은 단계 (b)에서 비등 온도를 갖는다. 선택적으로, 이 단계는 용매에서 출발 물질의 불완전한 용해를 초래한다.

[0011] 특히 출발 물질의 입자의 가능한 가장 작은 직경에 의해 달성 가능한 더 나은 분산은, 예를 들어, 수율 및 동역

학과 관련하여 $g-C_3N_4$ 에 대한 후속 반응을 개선한다.

- [0012] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (c)가 제공된다: 용매를 제거하여 출발 물질을 함유하는 예비혼합물을 형성시키는 단계.
- [0013] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (d)가 제공된다: 단계 (c)에서 수득된 예비혼합물을 가열하고, 예비혼합물을 200℃ 내지 700℃, 바람직하게는 400℃ 내지 600℃의 열분해 온도에서 열분해하여 벌크- $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 형성시키는 단계.
- [0014] 본 발명의 맥락에서 "벌크- $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질"은 특히, 선택적으로 복수의 층이 중첩되는 응집성의 층상 구조를 갖는 물질을 지칭한다.
- [0015] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (d)가 제공된다: 벌크- $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질을 초음파로 처리하여 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 형성시키는 단계.
- [0016] 초음파 처리는 특히 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 박리를 야기하고, 여기서 나노플레이크는 벌크 물질로부터 형성된다. 선택적으로, 벌크 물질의 층상 구조가 파괴되고, 이에 의해 나노플레이크가 형성된다. 초음파 처리의 또 다른 유리한 효과는 $g-C_3N_4$ 층 사이의 금속의 더 나은 분포일 수 있는데, 이는 이후 선택적으로 안정화 스페이서로서 작용할 수 있다.
- [0017] 선택적으로, 단계 (e)에서 처리에 사용되는 초음파는 20 kHz 내지 100 kHz의 주파수를 갖는다. 선택적으로, 단계 (d)에서 초음파에 의한 에너지 투입은 벌크 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 g 당 적어도 0.25 W이다.
- [0018] 본 발명의 맥락에서, "나노플레이크"는 특히 정확하게 나노규모 범위, 즉, 1 nm 내지 100 nm의 외부 치수를 갖는 입자를 지칭한다.
- [0019] 본 발명에 따른 방법에 의해 제조된 나노플레이크 또는 본 발명에 따른 나노플레이크는 특히 나노다공성이며, 즉, 이들은 100 nm 아래 범위의 치수를 갖는 기공을 갖는다. 나노다공성은 특히 단계 (b)에서 분산 및 선택적인 그라인딩 및 초음파 처리에 의해 달성된다.
- [0020] 선택적으로, 단계 (a)에서 철 화합물의 양은 출발 물질의 총량에 대해 1.0 wt% 내지 20 wt%인 것이 제공된다.
- [0021] 선택적으로, 단계 (b)에서 분산은 80℃ 내지 100℃, 바람직하게는 90℃ 내지 100℃의 온도에서 수행되는 것이 제공된다. 이는 출발 물질이 부분적으로 용해되도록 하여, 선택적으로 $g-C_3N_4$ 에 대한 반응의 완전성을 개선한다.
- [0022] 선택적으로, 단계 (b)에서의 분산은 초음파 처리를 사용하여 수행되는 것이 제공된다. 예를 들어, 처리는 분산액에 삽입되는 초음파 막대를 사용하여 수행될 수 있다. 선택적으로, 단계 (b)에서 처리에 사용되는 초음파는 20 kHz 내지 100 kHz의 주파수를 갖는다. 선택적으로, 단계 (d)에서 초음파에 의한 에너지 투입은 분산액 ml 당 적어도 0.25 W이다. 개선된 분산은 초음파 처리에 의해 달성될 수 있으며, 이는 선택적으로 $g-C_3N_4$ 에 대한 반응의 완전성을 개선한다.
- [0023] 선택적으로, 단계 (b)에서의 분산은 적어도 1시간, 특히 약 2시간이 걸린다.
- [0024] 선택적으로, 단계 (d)에서 열분해 온도로 가열하는 동안 가열 속도는 5℃/분 이상인 것이 제공된다.
- [0025] 선택적으로, 단계 (d)에서 열분해 온도는 대략 450℃인 것이 제공된다. 결과적으로, 인산철(III)이 출발 물질에 사용될 때, 생성된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 층에서 인산철(III)이 수득될 수 있다.
- [0026] 선택적으로, 단계 (d)에서 열분해 온도는 대략 550℃인 것이 제공된다. 결과적으로, 인산철(III)이 출발 물질에 사용될 때, 생성된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 층에서 산화철(III)이 수득될 수 있다.
- [0027] 선택적으로, 단계 (d)에서 열분해는 적어도 4시간, 특히 약 5시간이 걸린다.
- [0028] 선택적으로, 다음 추가 단계가 단계 (d) 후에 제공되는 것이 제공된다: $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질에 함유된 철을 환원시키는 단계. 선택적으로, 환원은 복합 물질을 수소로 처리함으로써 달성된다. 환원 정도에 따라, 철은 철(II) 이온 또는 원소 철로 변환될 수 있다.
- [0029] 선택적으로, 추가의 금속 화합물이 단계 (a)에서 첨가되고, 여기서 추가의 금속 화합물은 알루미늄, 리튬, 마그

네슘, 티탄, 니켈, 백금, 팔라듐 및 바나듐 화합물 또는 이들 화합물의 임의의 혼합물로부터 선택되는 것이 제공된다.

- [0030] 복합 물질의 특정 성질은 추가의 금속 화합물을 첨가함으로써 맞춤화될 수 있다.
- [0031] 선택적으로, 단계 (a)에서 추가 금속 화합물의 양은 출발 물질의 총량에 대해 0.5 wt% 내지 5.0 wt%, 바람직하게는 약 1.0 wt%인 것이 제공된다.
- [0032] 선택적으로, 단계 (d)에서 열분해는 불활성 가스 분위기, 특히 질소 분위기에서 일어나는 것이 제공된다. 이는 성분의 산화를 방지한다.
- [0033] 선택적으로, 단계 (a)에서 출발 물질의 성분은 100 nm 미만의 입자 크기를 달성하기 위해 선택적으로 볼 밀에서 분쇄되는 것이 제공된다.
- [0034] $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크는 또한 여러 단계를 포함하는 대안적인 방법에 의해 수득될 수 있는 것으로 밝혀졌다:
- [0035] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (a')가 제공된다: 200°C 내지 700°C, 바람직하게는 400°C 내지 600°C의 열분해 온도에서 $g-C_3N_4$ 전구체 물질 및 폴리머의 혼합물의 열분해에 의해 $g-C_3N_4$ 를 제공하는 단계. $g-C_3N_4$ 전구체 물질은 특히 우레아이다. 폴리머는 특히 폴리아크릴로니트릴이다. 바람직하게는, 혼합물은 100 nm 미만의 평균 입자 크기의 입자를 갖는 분말이다.
- [0036] 선택적으로, 열분해 및 단계 (a') 동안의 온도는 대략 500°C이다. 선택적으로, 단계 (a')에서 혼합물은 대략 5°C/min의 가열 속도로 열분해 온도로 가열된다. 선택적으로, 단계 (a)에서 열분해는 적어도 4시간, 특히 대략 5시간이 걸린다.
- [0037] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (b')가 제공된다: 단계 (a')에서 수득된 $g-C_3N_4$ 를 철 화합물과 혼합하여 예비혼합물을 수득하는 단계로서, 철 화합물은 산화철, 황화철, 인화철, 질화철 또는 이들의 임의의 혼합물로부터 선택되는, 단계. 본 발명의 맥락에서, 철 화합물로서 산화철, 황화철, 인화철 또는 질화철을 사용함으로써, 인산철(III)로 수득된 것들과 유사한 결과가 이미 제조된 $g-C_3N_4$ 가 제공되는 경우에만 수득될 수 있는 것으로 밝혀졌다. 선택적으로, 그렇지 않으면 철 화합물 주위에 $g-C_3N_4$ 클러스터의 형성만이 일어나서, 본 발명에 따른 물질이 수득될 수 없었다.
- [0038] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (c')가 제공된다: 단계 (b')에서 수득된 예비혼합물을 100 nm 미만의 입자 크기로 분쇄하는 단계. 선택적으로, 이는 볼 밀링에 의해 달성될 수 있다.
- [0039] 선택적으로, 다음 특징을 갖는 단계 (d')가 제공된다: 400°C 내지 600°C의 온도에서 분쇄된 예비혼합물을 처리하여 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 형성시키는 단계.
- [0040] 특히, 단계 (d')에서의 온도는 약 550°C이고, 이에 의해 산화철(III) 복합 물질이 수득될 수 있다.
- [0041] 선택적으로, 단계 (d')에서의 처리는 나노플레이크를 굳게 만들고 결합을 보정한다.
- [0042] 선택적으로, 단계 (d')는 불활성 가스 분위기, 특히 질소 분위기에서 수행된다.
- [0043] 두 방법 모두는 비슷한 성질을 갖는 최종 생성물로서 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 전달한다. 따라서, 방법은 대안적인 방법으로 이해될 수 있다.
- [0044] 선택적으로, 본 발명은 또한 본 발명에 따른 방법에 의해 수득되고/거나 수득 가능한 나노플레이크에 관한 것이다. 방법 단계는 나노플레이크를 종래 기술에 공지된 나노플레이크와 구별되는 특수 성질을 제공한다. 특히, 본 발명에 따른 방법을 이용함으로써, $g-C_3N_4$ 플레이크의 표면 상에 철의 특히 균질한 분포를 허용하는 복합 물질 구조가 생성된다.
- [0045] 선택적으로, 복합 물질이 기공을 포함하고, 여기서 기공은 100 nm 미만의 평균 기공 크기를 갖는 것이 제공된다.
- [0046] 선택적으로, 표면 상에 철 및/또는 철 화합물이 담지된 $g-C_3N_4$ -나노플레이크가 제공되고, 여기서 철 및/또는 철 화합물은 100 nm 미만의 입자 직경을 갖는 미립자 형태로 제공된다.

- [0047] 선택적으로, 본 발명은 또한 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 함유하거나 이로 구성된 수소 저장 물질에 관한 것이다. 선택적으로, 본 발명은 수소 저장 물질로서 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크의 용도에 관한 것이다.
- [0048] 선택적으로, 본 발명은 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 수소 가스로 로딩하는 것을 포함하는 수소 저장 방법에 관한 것이다. 선택적으로, 로딩은 10 bar 초과, 바람직하게는 25 bar 미만의 압력에서 일어난다.
- [0049] 선택적으로, 수소의 탈착은 로딩된 복합 물질을, 예를 들어, 60℃ 내지 100℃의 온도로 가열함으로써 달성된다.
- [0050] 전기장의 영향은 로딩을 향상시킬 수 있다. 전기장의 전압은 선택적으로 1000 V 초과이다.
- [0051] 선택적으로, 본 발명은 또한 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 함유하거나 이로 구성된 광촉매에 관한 것이다. 선택적으로, 본 발명은 광촉매로서 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크의 용도에 관한 것이다.
- [0052] 선택적으로, 본 발명은 또한 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 함유하거나 이로 구성된 광전기촉매에 관한 것이다. 선택적으로, 본 발명은 광전기촉매로서 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크의 용도에 관한 것이다.
- [0053] 선택적으로, 본 발명은 추가로 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크를 함유하거나 이로 구성된 전기촉매에 관한 것이다. 선택적으로, 본 발명은 전기촉매로서 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질 나노플레이크의 용도에 관한 것이다.
- [0054] 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질은 밴드 갭이 도핑 등에 의해 변하는 반도체이기 때문에, 이는 촉매 활성이다. 이에 의해서, 이는 수소의 저장 다음에 광촉매, 전기촉매 또는 광전기촉매로서 또한 사용될 수 있다.
- [0055] 선택적으로, 본 발명은 본 발명에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 물에 도입하는 것을 포함하는, 물의 광전기촉매 및 수소의 생산을 위한 방법에 관한 것이다. 선택적으로, 물에 도입된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크는, 선택적으로 UV/Vis 공급원인 방사선 공급원으로 조사된다. 선택적으로, 방사선원은 200 nm 내지 1000 nm의 파장을 갖는 전자기 방사선을 방출한다.
- [0056] 본 발명의 추가의 선택적 특징은 특허청구범위, 도면 및 구현예의 설명으로부터 명백해진다.
- [0057] 하기에서, 본 발명은 예시적인 구현예를 참조하여 상세히 설명될 것이다.

도면의 간단한 설명

- [0058] 도 1은 제1 구현예에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸 것이다.
- 도 2는 제2 구현예에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸 것이다.
- 도 3은 전압-보조 로딩이 있는 제3 구현예에 따른 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸다.

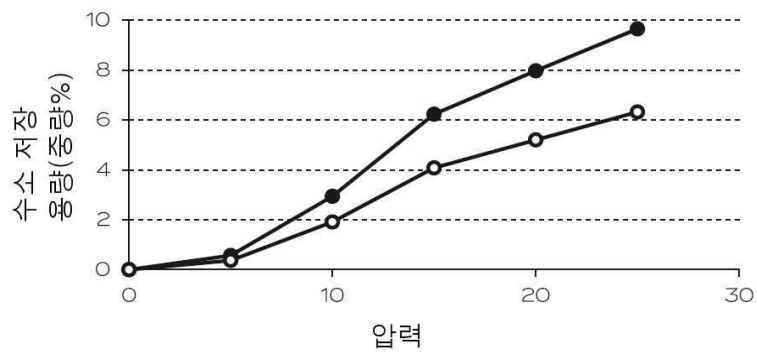
발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0059] 구현예 1
- [0060] 제1 구현예는 $g-C_3N_4$ /철 복합 물질의 제조를 나타내며, 이에 의해 2 wt%의 인산철(III), 95 wt%의 우레아 및 3 wt%의 폴리아크릴로니트릴의 혼합물이 출발 물질로서 사용된다. 성분을 혼합하고 볼 밀에서 약 45분 동안 600 rpm으로 분쇄하여 100 nm 미만의 평균 입자 크기를 갖는 출발 물질을 형성시킨다.
- [0061] 생성된 출발 물질은 대략 95℃의 온도에서 분산기 및 초음파 배스를 사용하여 가능한 한 적은 물에 분산된다.
- [0062] 분산이 완료되면, 물이 제거되고, 나머지 물질은 N_2 분위기 하에 대략 550℃의 열분해 온도에서 대략 5시간 동안 열분해된다. 열분해 온도에 도달할 때까지, 가열 속도는 대략 5℃/min이다.

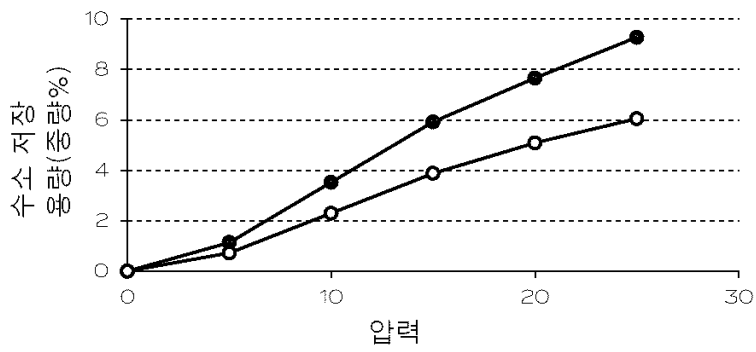
- [0063] 층상 벌크 $g-C_3N_4$ /복합 물질이 수득되며, 여기서 산화철(III)이 층들 사이에 포함된다.
- [0064] 이후, 생성된 벌크 $g-C_3N_4$ /복합 물질은 초음파 처리에 의해 박리되어 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 형성시킨다.
- [0065] 화합물은 수소 저장 물질로서 사용될 수 있다. 최대 25 bar에서, 약 $-20^{\circ}C$ 에서 9.2 wt%의 수소 저장 용량 및 약 $25^{\circ}C$ 에서 6.1 wt%의 수소 저장 용량이 달성될 수 있다. 실질적으로 완전한 탈착은 대략 $80^{\circ}C$ 에서 일어난다.
- [0066] 도 1은 대략 $-20^{\circ}C$ (검은색 원) 내지 대략 $25^{\circ}C$ (흰색 원)와 비교하여 압력의 함수로서 제1 구현예에 따라 제조된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸다.
- [0067] 구현예 2
- [0068] 제2 구현예는 $g-C_3N_4$ /철-티탄 복합 물질의 제조를 나타내고, 여기서 1 wt%의 인산철(III), 95 wt%의 우레아 및 3 wt%의 폴리아크릴로니트릴과 추가 첨가된 1 wt%의 이산화티탄의 혼합물이 사용된다.
- [0069] 추가의 방법 단계가 제1 구현예와 동일한 방식으로 수행된다.
- [0070] Ti-도핑된 $g-C_3N_4$ /Fe 복합 나노플레이크가 수득되며, 이는 수소 저장 물질로서 사용될 수 있다. 최대 25 bar에서, 약 $-20^{\circ}C$ 에서 9.6 wt%의 수소 저장 용량 및 약 $25^{\circ}C$ 에서 6.3 wt%의 수소 저장 용량이 달성될 수 있다. 실질적으로 완전한 탈착은 대략 $80^{\circ}C$ 에서 일어난다.
- [0071] 도 2는 대략 $-20^{\circ}C$ (검은색 원) 내지 대략 $25^{\circ}C$ (흰색 원)와 비교하여 압력의 함수로서 제2 구현예에 따라 제조된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸다.
- [0072] 구현예 3
- [0073] 제3 구현예는 $g-C_3N_4$ /철-티탄 복합 물질의 제조를 나타내고, 여기서 3 wt%의 인산철(III), 90 wt%의 우레아 및 5 wt%의 폴리아크릴로니트릴과 추가 첨가된 1 wt%의 이산화티탄의 혼합물이 출발 물질로서 사용된다. 성분을 혼합하고 볼 밀에서 약 45분 동안 600 rpm으로 분쇄하여 100 nm 미만의 평균 입자 크기를 갖는 출발 물질을 형성시킨다.
- [0074] 생성된 출발 물질은 대략 $95^{\circ}C$ 의 온도에서 분산기 및 초음파 배스를 사용하여 가능한 한 적은 물에 분산된다.
- [0075] 분산이 완료되면, 물이 제거되고, 나머지 물질은 N_2 분위기 하에 약 $450^{\circ}C$ 의 열분해 온도에서 약 5시간 동안 열분해된다. 열분해 온도에 도달할 때까지, 가열 속도는 약 $5^{\circ}C/min$ 이다.
- [0076] 층상 벌크 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질이 수득되며, 여기서 인산철(III)이 층들 사이에 포함된다.
- [0077] 이후, 생성된 벌크 $g-C_3N_4$ /복합 물질은 초음파 처리에 의해 박리되어 $g-C_3N_4$ /금속 복합 나노플레이크를 형성시킨다.
- [0078] 화합물은 수소 저장 물질로서 사용될 수 있다. 최대 25 bar에서, 7.4 wt%의 수소 저장 용량이 달성될 수 있다.
- [0079] 복합 물질이 약 1400 V의 전압으로 전기장의 추가적인 영향 하에 로딩되는 경우, 11.7 wt%의 수소 저장 용량이 달성될 수 있다.
- [0080] 도 3은 전압-보조 로딩이 없는 용량(검은색 원)과 전압-보조 로딩이 있는 용량(흰색 원)을 비교하여, 압력의 함수로서 제3 구현예에 따라 제조된 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 수소 저장 용량을 나타낸다.
- [0081] 구현예 4
- [0082] 제3 구현예에 따라 제조된 Ti 및 Fe를 갖는 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질은 본 발명에 따른 임의의 다른 복합 물질과 같이, 물로부터 수소 및 산소의 생산에서 전기광촉매로서 사용될 수 있다.
- [0083] 물 중 $g-C_3N_4$ /금속 복합 물질의 분산액이 UV/Vis 공급원을 사용하여 조사되는 경우, 약 $35.3 \text{ mmol}/(g \cdot h)$ 의 수소 생성 속도가 달성될 수 있다. 수소의 생성 동안, 약 96 mV의 과전압이 측정될 수 있다. 전류 밀도는 대략 $2.67 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 이다.

도면

도면1



도면2



도면3

