



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2015-0133889
(43) 공개일자 2015년12월01일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09K 11/65 (2006.01) C01B 31/02 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-0060215
(22) 출원일자 2014년05월20일
심사청구일자 2014년05월20일

(71) 출원인
인하대학교 산학협력단
인천광역시 남구 인화로 100, 인하대학교 (용현동)
(72) 발명자
박성진
서울특별시 서초구 잠원동 52~67 녹원한신 아파트 102동 707호
오정훈
서울 도봉구 마들로 891, 301동 1402호 (도봉동, 도봉파크빌3단지아파트)
(74) 대리인
이원희

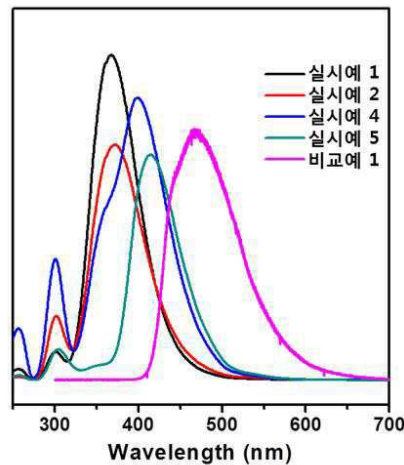
전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 발명의 명칭 **카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법**

(57) 요약

본 발명은 카본 나이트라이드(carbon nitride)를 준비하는 단계(단계 1); 및 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시키는 단계(단계 2);를 포함하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법을 제공한다. 본 발명에 따른 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법은 카본 나이트라이드의 산화 정도를 조절하여 형광 특성을 조절할 수 있는 효과가 있다. 또한, 상기 형광 특성 조절방법을 수행하여 형성된 산화된 카본 나이트라이드는 용매에 고르게 분산시킬 수 있기 때문에 센서 등의 응용에 용이한 효과가 있다.

대표도 - 도10



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 50736-1

부처명 미래창조과학부

연구관리전문기관 한국연구재단

연구사업명 글로벌프론티어연구개발사업

연구과제명 탄소 기반 2D 및 차원 융합 하이브리드 소재 개발 및 분석

기 여 율 1/1

주관기관 인하대학교 산학협력단

연구기간 2014.09.01 ~ 2020.08.31

명세서

청구범위

청구항 1

카본 나이트라이드(carbon nitride)를 준비하는 단계(단계 1); 및
상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시키는 단계(단계 2);를 포함하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의
형광 특성 조절방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 단계 1에서 카본 나이트라이드의 준비는,

다이시안 다이아마이드(dicyandiamide), 시안아마이드(cyanamide), 멜라민 및 멜렘으로 이루어지는 군으로부터
선택되는 1 종 이상의 물질을 200 내지 800 °C의 온도로 가열하는 단계(단계 a);를 포함하는 것을 특징으로 하
는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 단계 2의 산화는 산화제를 첨가하여 수행되는 것을 특징으로 하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조
절방법.

청구항 4

제3항에 있어서,

상기 산화제는 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 35 내지 1050 중량부로 첨가되는 것을 특징으로 하는 카
본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 단계 2의 산화는 10 내지 60 °C의 온도에서 30 분 내지 4 시간 동안 수행되는 것을 특징으로 하는 카본 나
이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 단계 2를 수행하고 난 후,

카본 나이트라이드의 산화반응을 종결시키는 단계(단계 a); 및

상기 단계 a에서 산화반응이 종결된 카본 나이트라이드를 회수하는 단계(단계 b);를 포함하는 것을 특징으로 하

는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 단계 a의 산화반응의 종결은 과산화수소를 첨가하여 수행되는 것을 특징으로 하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

청구항 8

제6항에 있어서,

상기 단계 b에서 산화된 카본 나이트라이드의 회수는 산화반응이 종결된 카본 나이트라이드를 여과, 세척 및 건조하여 수행되는 것을 특징으로 하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 카본 나이트라이드(C_3N_4 , Carbon Nitride)는 리비히(Liebig)에 의해 처음 합성되었는데, 수소가 포함된 고분자 전구체라 하여 멜론(melon)이라 칭해졌다. 카본 나이트라이드는 탄소 구조체에 질소의 기능화와 더불어 이를 통한 물리적, 전기적인 특성으로 많은 관심을 받고 있다. 카본 나이트라이드는 구조에 함유된 질소의 염기적 특성으로 인해 이산화탄소 흡착제로서의 가능성이 매우 크고, 수소가스의 저장체로도 응용이 가능하다(Appl. Phys. Lett. 2001, 79, 1552). 또한, 기존의 그래핀(graphene)이나 탄소나노튜브 보다 뛰어난 전기적 특성으로 인하여 수퍼 커패시터로 적용될 수 있고, 카본 나이트라이드의 전자전달능력은 광촉매로서의 응용도 가능하다. 2009 년 'Nature. Materials' 지에 카본 나이트라이드 폴리머와 가시광선을 이용하여 물로부터 수소가스를 발생시켰다는 연구가 보고되었다(Nature. Mater., 2009, 8, 76-80).

[0003] 이러한 카본 나이트라이드를 용액상으로 활용하기 위해서는 용매에 고르게 분산시켜 사용하여야 하는데, 카본 나이트라이드는 매우 안정하여 일반적으로 용매에 분산시키기가 매우 어렵다. 특히, 카본 나이트라이드의 형광 특성을 활용하기 위해서는 상기와 같이 용매에 분산시켜 용액상으로 활용하는 것이 필요하다.

[0004] 또한, 카본 나이트라이드의 고유의 형광 특성을 조절하여 다양한 형광 특성을 얻을 수 있다면 센서 등에서 활용하는 것이 매우 용이할 것이다.

[0005] 이에, 본 발명자들은 카본 나이트라이드의 형광 특성을 조절할 수 있는 방법에 대하여 연구하던 중, 카본 나이트라이드의 산화 정도를 조절함으로써 카본 나이트라이드의 형광 특성을 조절하는 방법을 개발하고, 본 발명을 완성하였다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명의 목적은 카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법을 제공하는 데 있다.

과제의 해결 수단

[0007] 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은

[0008] 카본 나이트라이드(carbon nitride)를 준비하는 단계(단계 1); 및

[0009] 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시키는 단계(단계 2);를 포함하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법을 제공한다.

발명의 효과

[0010] 본 발명에 따른 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법은 카본 나이트라이드의 산화 정도를 조절하여 형광 특성을 조절할 수 있는 효과가 있다. 또한, 상기 형광 특성 조절방법을 수행하여 형성된 산화된 카본 나이트라이드는 용매에 고르게 분산시킬 수 있기 때문에 센서 등의 응용에 용이한 효과가 있다.

도면의 간단한 설명

[0011] 도 1은 본 발명에 따른 실시예 3에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드를 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;

도 2는 본 발명에 따른 실시예 4에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드를 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;

도 3은 본 발명에 따른 비교예 1에서 제조된 카본 나이트라이드를 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰한 사진이고;

도 4는 본 발명에 따른 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 X-선 광전자 분광기(XPS)로 분석한 그래프이고;

도 5는 본 발명에 따른 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 열중량 분석(TGA)으로 분석한 그래프이고;

도 6은 본 발명에 따른 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 X-선 회절 분석기(XRD)로 분석한 그래프이고;

도 7은 본 발명에 따른 실시예 3에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드를 원자힘 현미경(AFM)으로 분석한 사진이고;

도 8은 본 발명에 따른 실시예 4에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드를 원자힘 현미경(AFM)으로 분석한 사진이고;

도 9는 본 발명에 따른 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 자외선-가시광선 분광 분석법(UV-Vis spectroscopy)으로 분석한 그래프이고;

도 10은 본 발명에 따른 실시예 1, 실시예 2, 실시예 4, 실시예 5 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 광발광(Photoluminescence) 분석으로 분석한 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0012] 본 발명은

[0013] 카본 나이트라이드(carbon nitride)를 준비하는 단계(단계 1); 및

[0014] 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시키는 단계(단계 2);를 포함하는 카본 나이트라이드(C_3N_4)의 형광 특성 조절방법을 제공한다.

- [0015] 이하, 본 발명에 따른 카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법에 대하여 각 단계별로 상세히 설명한다.
- [0016] 먼저, 본 발명에 따른 카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법에 있어서, 단계 1은 카본 나이트라이드(carbon nitride)를 준비하는 단계이다.
- [0017] 상기 단계 1의 카본 나이트라이드는 일반적으로 사용되는 방법으로 제조될 수 있으나,
- [0018] 일례로써, 상기 단계 1에서 카본 나이트라이드의 준비는,
- [0019] 다이시안 다이아마이드(dicyandiamide), 시안아마이드(cyanamide), 멜라민 및 멜렘으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1 종 이상의 물질을 200 내지 800 °C의 온도로 가열하는 단계(단계 a);를 수행하여 준비할 수 있다.
- [0020] 상기 단계 a에서는 다이시안 다이아마이드(dicyandiamide), 시안아마이드(cyanamide), 멜라민 및 멜렘 등의 카본 나이트라이드 전구체 물질을 가열하여 카본 나이트라이드를 제조할 수 있다.
- [0021] 상기 카본 나이트라이드 전구체 물질을 가열하는 온도는 200 내지 800 °C인 것이 바람직하며, 400 내지 600 °C의 온도인 것이 더욱 바람직하다. 만약, 상기 카본나이트라이드 전구체 물질을 가열하는 온도가 200 °C 미만일 경우에는 질소가 풍부한 카본 나이트라이드가 제조되지 않는 문제가 있으며, 800 °C를 초과하는 경우에는 카본 나이트라이드의 구조가 붕괴되어 질소의 비율이 현저하게 떨어지는 문제가 있다.
- [0022] 이때, 상기 카본 나이트라이드 전구체 물질을 가열하는 승온 속도는 분당 3 °C의 온도일 수 있다. 분당 3 °C의 승온 속도로 수행하게 되면 카본 나이트라이드 구조 형성이 용이하다.
- [0023] 다음으로, 본 발명에 따른 카본 나이트라이드의 형광 특성 조절방법에 있어서, 단계 2는 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시키는 단계이다.
- [0024] 상기 단계 2에서는 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 산화시켜 카본 나이트라이드의 형광 특성을 조절할 수 있다. 상기와 같이 산화시키는 단계를 통해 카본 나이트라이드의 산화 정도를 조절하여 형광 특성을 조절할 수 있다.
- [0025] 또한, 상기 단계 2를 수행하여 형성된 산화된 카본 나이트라이드는 용매에 고르게 분산시킬 수 있기 때문에 센서 등의 응용에 용이하다.
- [0026] 구체적으로, 상기 단계 2의 산화는 일례로써, 산화제를 첨가하여 수행될 수 있다. 상기와 같이 산화제를 사용하여 카본 나이트라이드를 산화시키는 경우, 카본 나이트라이드 표면에 산소를 결합시키며 산화된 카본 나이트라이드는 물에 분산되는 특성을 가질 수 있다. 상기 산화제로 포타슘 퍼망가네이트 등의 산화제를 사용할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0027] 또한, 상기 단계 2의 산화는 구체적인 일례로써, 황산 등의 산성 용액에 상기 단계 1에서 준비된 카본 나이트라이드를 첨가하여 카본 나이트라이드를 분산시킨 후, 상기 산화제를 첨가하여 수행될 수 있다.
- [0028] 이때, 상기 산화제는 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 35 내지 1050 중량부로 첨가되는 것이 바람직하다. 만약, 상기 산화제가 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 35 중량부 미만으로 첨가되는 경우에는 카본 나이트라이드의 형광 특성이 변할 수는 있으나, 재현성이 떨어지는 문제가 있으며, 100 중량부를 초과하는 경우에는 산화된 카본 나이트라이드의 수득률이 부족한 문제가 있다.

- [0029] 또한, 상기 단계 2의 산화는 10 내지 60 ℃의 온도에서 30 분 내지 4 시간 동안 수행될 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0030] 나아가, 상기 단계 2를 수행하고 난 후,
- [0031] 카본 나이트라이드의 산화반응을 종결시키는 단계(단계 a); 및
- [0032] 상기 단계 a에서 산화반응이 종결된 카본 나이트라이드를 회수하는 단계(단계 b);를 포함하는 회수 공정을 수행할 수 있다.
- [0033] 먼저, 상기 단계 a는 카본 나이트라이드의 산화반응을 종결시키는 단계이다.
- [0034] 구체적인 일례로써, 상기 단계 a의 산화반응의 종결은 과산화수소를 첨가하여 수행될 수 있다. 상기 카본 나이트라이드의 산화반응을 산성 용액 내에서 수행하고 난 후, 충분한 양의 증류수를 첨가하고, 탁한 하얀색 용액상이 관찰될 때까지 과산화수소(hydrogen peroxide)를 첨가하게 되면 산화반응을 종결시킬 수 있다.
- [0035] 다음으로, 상기 단계 b는 상기 단계 a에서 산화반응이 종결된 카본 나이트라이드를 회수하는 단계이다.
- [0036] 이때, 상기 단계 b에서 산화된 카본 나이트라이드의 회수는 산화반응이 종결된 카본 나이트라이드를 여과, 세척 및 건조하여 수행될 수 있다.
- [0037] 구체적인 일례로써, 상기 단계 a에서 산화반응을 종결시키고, 형성된 산화된 카본 나이트라이드가 포함된 용액을 충분히 저어준 후, 생성물인 산화된 카본 나이트라이드를 막여과기(membrane filter)를 사용하여 여과하고, 물과 같은 용매로 세척하여 불순물을 제거하여 제조된 산화된 카본 나이트라이드의 순도를 높일 수 있다. 그 후, 상기 세척된 산화된 카본 나이트라이드를 진공 조건에서 건조시켜 최종 산화된 카본 나이트라이드를 얻을 수 있으나, 상기 회수 공정은 이에 제한되지 않고 수행할 수 있다.
- [0038] 이하, 이하, 하기 실시예 및 실험예에 의하여 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0039] 단, 하기 실시예 및 실험예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐 발명의 범위가 실시예 및 실험예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0040] <실시예 1> 산화된 카본 나이트라이드의 제조 1
- [0041] 단계 1: 알루미늄 도가니에 10 g의 다이산 다이아마이드를 담은 채로 관형 전기로(tube furnace)의 중앙에 위치시켰다. 상기 관형 전기로의 관 내부에 공기를 흘려주며 가열 온도는 500 ℃이고, 승온 속도 3 ℃/분으로 설정하였다. 상기 관형 전기로의 온도가 500 ℃의 온도에 다다르면 2 시간 동안 온도를 유지시켜 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0042] 단계 2: 상기 단계 1에서 제조된 카본 나이트라이드를 막자와 막자사발을 이용하여 곱게 갈아 카본 나이트라이드 파우더를 준비하였다. 얼음조(ice bath)에 잠겨있는 250 ml 삼각 플라스크에 황산 50 ml와 상기에서 준비된 카본 나이트라이드 파우더 1 g, 포타슘 퍼망가네이트 0.35 g을 첨가하여 혼합액을 제조하였다. 상기 혼합액이 포함된 삼각플라스크를 35 ℃의 온도로 예열된 오일조에 넣고 2 시간 동안 교반하였다.
- [0043] 그 후, 상기 삼각플라스크를 얼음조에 담긴 채로 교반하며 상기 삼각플라스크에 증류수 200 ml를 첨가하고, 과산화수소수를 용액이 흰 색으로 변할 때까지 첨가하여 반응을 종결시킨 후, 여과, 세척 및 건조 공정을 수행하

여 산화된 카본 나이트라이드를 제조하였다.

- [0044] <실시예 2> 산화된 카본 나이트라이드의 제조 2
- [0045] 상기 실시예 1의 단계 2에서 포타슘 퍼망가네이트를 1.75 g 첨가하여 혼합액을 제조한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화된 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0046] <실시예 3> 산화된 카본 나이트라이드의 제조 3
- [0047] 상기 실시예 1의 단계 2에서 포타슘 퍼망가네이트를 3.5 g 첨가하여 혼합액을 제조한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화된 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0048] <실시예 4> 산화된 카본 나이트라이드의 제조 4
- [0049] 상기 실시예 1의 단계 2에서 포타슘 퍼망가네이트를 7.0 g 첨가하여 혼합액을 제조한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화된 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0050] <실시예 5> 산화된 카본 나이트라이드의 제조 5
- [0051] 상기 실시예 1의 단계 2에서 포타슘 퍼망가네이트를 10.5 g 첨가하여 혼합액을 제조한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일하게 수행하여 산화된 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0052] <비교예 1> 카본 나이트라이드의 제조
- [0053] 알루미늄 도가니에 10 g의 다이시안 다이아마이드를 담은 채로 관형 전기로(tube furnace)의 중앙에 위치시켰다. 상기 관형 전기로의 관 내부에 공기를 흘려주며 가열 온도는 500 ℃이고, 승온 속도 3 ℃/분으로 설정하였다. 상기 관형 전기로의 온도가 500 ℃의 온도에 다다르면 2 시간 동안 온도를 유지시켜 카본 나이트라이드를 제조하였다.
- [0054] <실험예 1> 주사 전자 현미경(SEM) 분석
- [0055] 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 형상을 관찰하기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 주사 전자 현미경(SEM)으로 관찰하고, 그 결과를 도 1 내지 3에 나타내었다.
- [0056] 도 1 내지 3에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4는 일반적인 카본 나이트라이드인 비교예 1에 비해 훨씬 작은 크기의 입자로 구성되어 있음을 알 수 있다. 이때, 제조 과정에서 사용한 포타슘 퍼망가네이트의 양이 많은 경우인 실시예 4의 경우에는 더 작은 입자의 형태를 갖는 것을 알 수 있다.
- [0057] <실험예 2> X-선 광전자 분광기 분석 1
- [0058] 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 산화 정도를 알아보기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 X-선 광전자 분광기(X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS, 제조사:Thermo Fisher Scientific, 제조원:영국)로 분석하였으며, 그 결과를 도 4에 나타내었다.
- [0059] 도 4에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우를 살펴보면, 산화제로 사용된 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 높은 경우인 실시예 3의 경우에 탄

소(C), 질소(N)에 해당하는 피크(peak)의 결합에너지(binding energy)가 더 높은 것을 확인할 수 있었다. 이때, 산화되지 않은 카본 나이트라이드인 비교예 1의 경우에는 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3의 경우보다 탄소(C), 질소(N)에 해당하는 피크(peak)의 결합에너지(binding energy)가 더 낮은 것을 확인할 수 있었다.

이를 통해 카본 나이트라이드가 산화되며 산소를 포함하는 작용기가 첨가되고, 이러한 과정에서 탄소와 질소의 결합 환경에 변화가 생겼음을 알 수 있다.

또한, 비교예 1에 비해서 실시예 3 및 실시예 4의 경우 산소에 해당하는 피크가 눈에 띄게 증가한 것을 알 수 있다. 이에 따라, 카본 나이트라이드보다 산화된 카본 나이트라이드에 있는 산소가 많아지고 기여도가 커졌음을 확인할 수 있다.

<실험예 3> X-선 광전자 분광기 분석 2

본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드를 구성하는 성분들을 알아보기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 X-선 광전자 분광기(X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS, 제조사:Thermo Fisher Scientific, 제조원:영국)로 분석하였으며, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

표 1

	실시예 3	실시예 4	비교예 1
C1s (원자%)	40.35	45.87	51.22
N1s (원자%)	43.99	36.92	45.01
O1s (원자%)	14.44	17.22	3.77

상기 표 1에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우에는 제조시 사용되는 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 양이 증가할수록 산소의 함량이 점차 증가함을 알 수 있다.

<실험예 4> 원소 분석 실험

본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드를 구성하는 성분들의 함량을 알아보기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 사용하여 원소 분석 실험을 수행하였으며, 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

상기 원소 분석 실험은 원소 분석 장치(EA1110-FISONS, 제조사:ThermoQuest, 제조원:이탈리아; FlashEA 1112, 제조사:Thermo Finnigan, 제조원:이탈리아)를 이용하여 장치 내에 잔류하는 공기 중의 산소 및 이산화탄소를 제거한 후, 시료를 연소시켜 발생하는 기체의 양으로 탄소, 질소, 산소, 수소의 질량을 측정하는 방법을 이용하였다.

표 2

	실시예 3	실시예 4	비교예 1
탄소 (중량%)	25.01	25.28	33.79
질소 (중량%)	41.99	41.47	56.23
산소 (중량%)	22.89	28.52	5.71
수소 (중량%)	0.40	3.36	1.90
탄소/산소 원자비	1.46	1.18	7.88
탄소/질소 원자비	0.69	0.71	0.70

질소/산소 원자비	2.10	1.66	11.24
-----------	------	------	-------

[0070]

[0071]

상기 표 2에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우가 비교예 1의 카본 나이트라이드보다 산소를 더 많이 함유하고 있음을 알 수 있다.

[0072]

또한, 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드와 카본 나이트라이드의 탄소/질소 원자비가 거의 동일한 것으로 보아, 카본 나이트라이드가 구성하는 원자비는 유지된다는 것을 확인할 수 있다.

[0073]

<실험예 5> 열중량 분석

[0074]

본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 환원정도를 알아보기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 사용하여 열중량 분석(Thermogravimetry Analysis, TGA, 제조사:TA Instruments, 제조원:미국)을 수행하였으며, 그 결과를 도 5에 나타내었다.

[0075]

도 5에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우에는 100 °C의 온도에서부터 680 °C의 온도까지 질량이 꾸준히 감소함을 알 수 있다.

[0076]

반면, 비교예 1에서 제조된 카본 나이트라이드의 경우에는 500 °C의 온도에서부터 질량이 급격히 감소함을 나타내는 것을 알 수 있다.

[0077]

이는 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우에는 100 °C의 온도부터 시료에 존재하는 물 분자들이 증발하면서 질량이 감소하는 것으로 보이며, 150 내지 600 °C의 온도 부근에서는 산화된 카본 나이트라이드 표면에 결합된 산소를 포함하는 작용기들이 열에 의해 분해되면서 질량이 감소한 것으로 판단된다.

[0078]

이로부터, 본 발명에 따른 산화된 카본 나이트라이드는 산소가 많이 도입된 것을 확인할 수 있다.

[0079]

<실험예 6> X-선 회절분석

[0080]

본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 구조변화를 확인하기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 X-선 회절 분석기(X-ray diffraction, XRD, 제조사:Rigaku, 제조원:일본)로 분석하였으며, 그 결과를 도 6에 나타내었다.

[0081]

X-선 회절 분석에서 2 θ 값은 카본 나이트라이드의 층간 거리에 대한 간접적인 정보를 제공하는 격자거리 d(d-spacing)에 관한 정보를 제공한다. 예를 들면, X-선 회절 분석에서 2 θ 값이 커지게 되면 d 값이 작아져 이로부터 카본 나이트라이드의 층간 거리가 가까워짐을 알 수 있다.

[0082]

도 6에 나타난 바와 같이, 비교예 1에서 제조된 카본 나이트라이드의 경우에는 d(d-spacing)가 흑연과 유사한 약 0.327 nm 정도임을 알 수 있다. 이때, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우에도 비교예 1과 2 θ 값이 유사한 것으로 보아 산화 후에도 카본 나이트라이드의 구조가 유지되었다는 것을 확인할 수 있다.

[0083]

<실험예 7> 원자힘 현미경(AFM) 분석

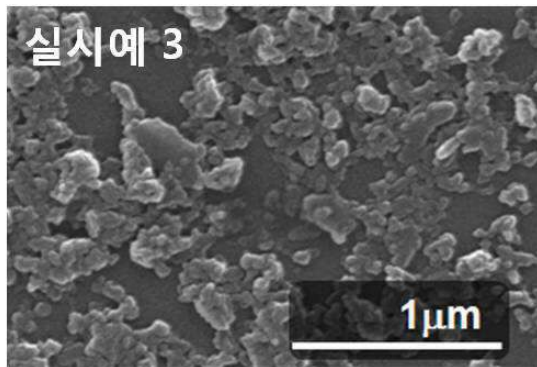
[0084]

본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 입자 크기를 확인하기 위하여, 상기 실시예 3 및 실시예 4에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드를 원자힘 현미경(Atomic Force Microscope, AFM)으로 분석하였으며, 그 결과를 도 7 및 도 8에 나타내었다.

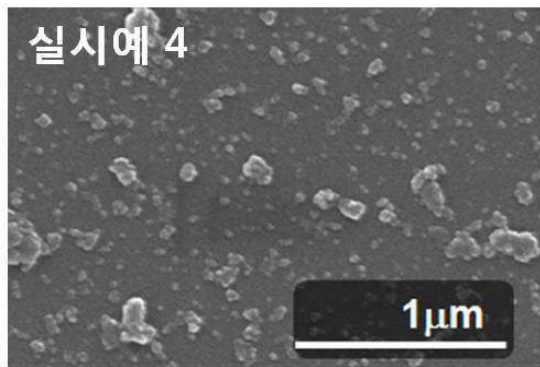
- [0085] 도 7 및 도 8에 나타난 바와 같이, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 350 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3의 경우에는 약 50 내지 200 nm의 폭을 가지며, 두께는 약 0.4 내지 1.2 nm인 것을 확인할 수 있다.
- [0086] 또한, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 700 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 4의 경우에는 약 20 내지 50 nm의 폭을 가지며, 두께는 약 0.5 내지 1.3 nm로 상기 실시예 1과 비교하여 더 작은 것을 확인할 수 있었다.
- [0087] <실험예 8> UV-Vis 분석
- [0088] 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 빛의 흡수 파장을 확인하기 위하여, 상기 실시예 3, 실시예 4 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 자외선-가시광선 분광 분석법(UV-Vis spectroscopy)으로 분석하였으며, 그 결과를 도 9에 나타내었다.
- [0089] 도 9에 나타난 바와 같이, 비교예 1에서 제조된 카본 나이트라이드에 비해 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 3 및 실시예 4의 경우의 흡수 파장이 단파장 쪽으로 이동한 것을 확인할 수 있었다. 이를 통해 산화된 카본 나이트라이드의 빛을 흡수하는 특성이 변화한 것을 확인할 수 있었다.
- [0090] <실험예 9> 형광 특성 분석
- [0091] 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법으로 제조된 카본 나이트라이드의 형광 특성을 확인하기 위하여, 상기 실시예 1, 실시예 2, 실시예 4, 실시예 5 및 비교예 1에서 제조된 산화된 카본 나이트라이드 및 카본 나이트라이드를 광발광(Photoluminescence) 분석을 수행하였으며, 그 결과를 도 10에 나타내었다.
- [0092] 도 10에 나타난 바와 같이, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 35 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 1의 경우에는 발광 파장이 약 367 nm인 것을 확인할 수 있으며, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 175 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 2의 경우에는 발광 파장이 약 371 nm인 것을 확인할 수 있었다. 또한, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 700 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 4의 경우에는 발광 파장이 약 400 nm인 것을 확인할 수 있으며, 산화제인 포타슘 퍼망가네이트의 함량이 카본 나이트라이드 100 중량부에 대하여 1050 중량부 첨가되어 제조된 산화된 카본 나이트라이드인 실시예 5의 경우에는 발광 파장이 약 413 nm인 것을 확인할 수 있었다. 이때, 비교예 1에서 제조된 카본 나이트라이드의 발광 파장은 약 470 nm에서 나타나는 것을 확인할 수 있었다.
- [0093] 상기와 같이, 본 발명에 따른 형광 특성 조절방법을 통하여 발광 파장을 조절함으로써 형광 특성을 조절할 수 있음을 확인할 수 있었다.

도면

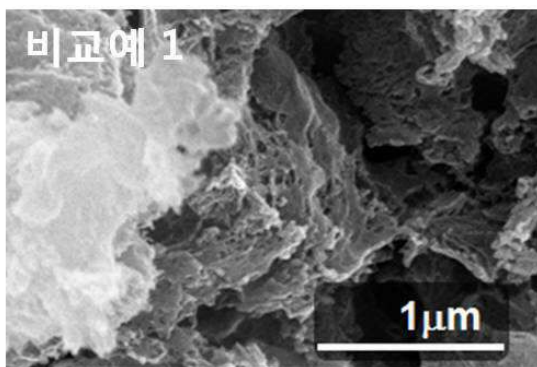
도면1



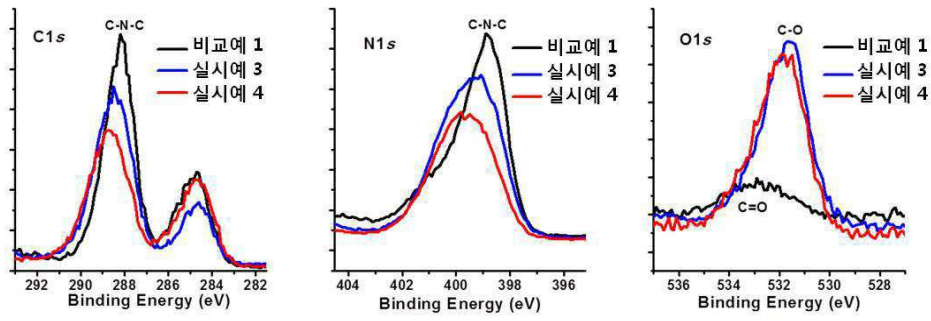
도면2



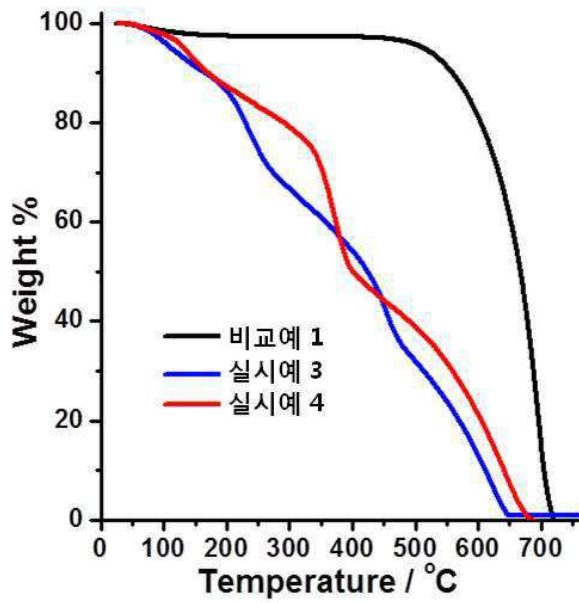
도면3



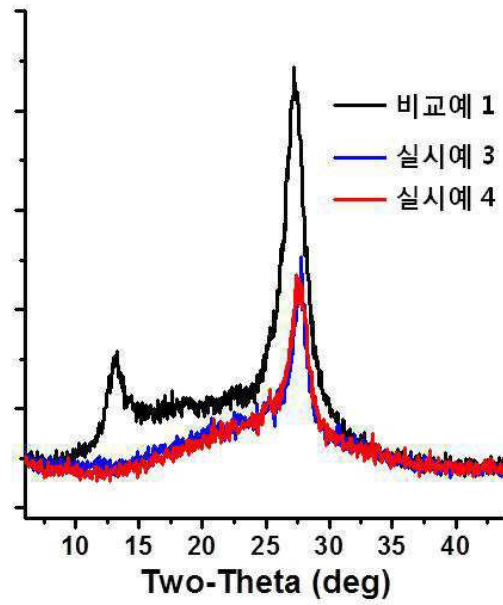
도면4



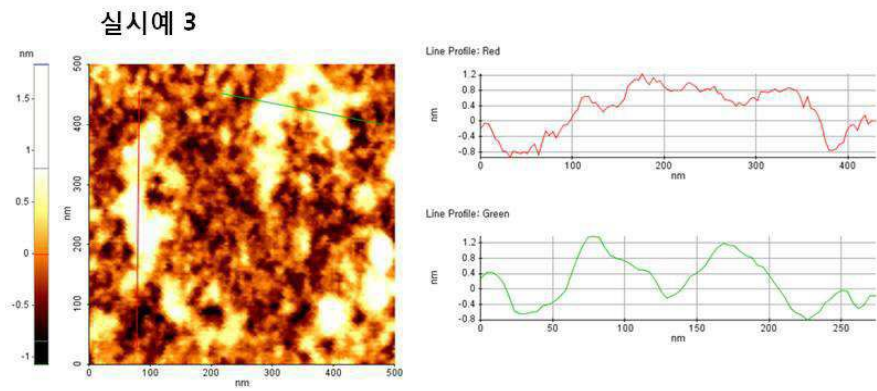
도면5



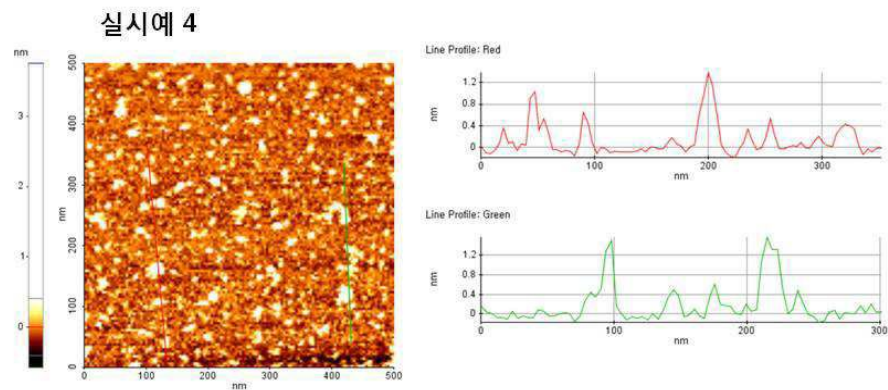
도면6



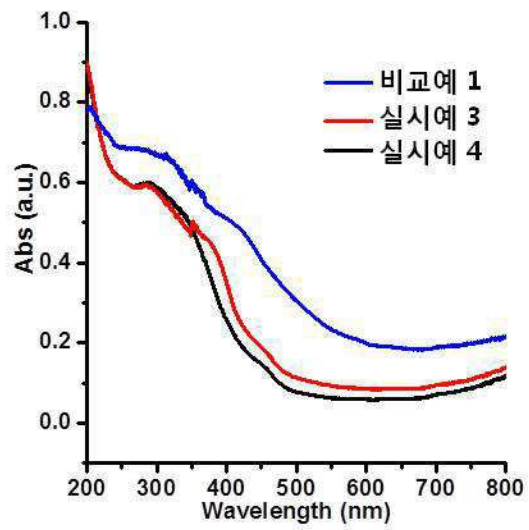
도면7



도면8



도면9



도면10

