



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2008-0102268
(43) 공개일자 2008년11월24일

(51) Int. Cl.

B82B 3/00 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2008-7023931

(22) 출원일자 2008년09월30일

심사청구일자 없음

번역문제출일자 2008년09월30일

(86) 국제출원번호 PCT/US2007/005499

국제출원일자 2007년03월02일

(87) 국제공개번호 WO 2007/103256

국제공개일자 2007년09월13일

(30) 우선권주장

60/779,119 2006년03월03일 미국(US)

60/837,057 2006년08월10일 미국(US)

(71) 출원인

바텔리 메모리얼 인스티튜트

미국 오하이오 43201-2693 컬럼부스 킹 애버뉴 505

(72) 발명자

쿵다, 아미드

미국, 워싱턴 99354, 리치랜드, 스티븐스 드라이브 1850, 아파트 129

포시드, 윌리엄, 씨.

미국, 워싱턴 99337, 켄윅, 노스 아이온 스트리트 114

클라크, 마크, 엘.

미국, 워싱턴 99337, 켄윅, 에스. 켈러 플레이스 2931

(74) 대리인

김영철, 김 순 영, 이준서

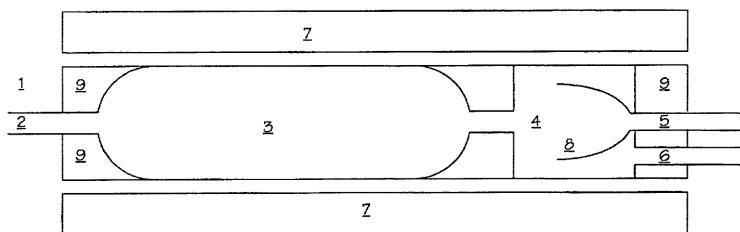
전체 청구항 수 : 총 35 항

(54) 고농도 나노입자를 생성하기 위한 방법 및 장치

(57) 요약

C₆₀의 나노입자에 한정하지 않지만, 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법 및 장치가 개시된다. 본 발명은, 기화 챔버와 희석 챔버를 가지는 퍼니스 튜브와 연통하는 고체상 에어로졸 분산기를 사용한다. 가열부재는 퍼니스 튜브를 둘러싼다. 가열부재로부터의 열은, 기화 챔버의 가스 흐름 내에 포함된 벌크 물질을, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 가열한다. 기화된 벌크 물질을, 그 다음에, 희석 가스 포트를 통하여 불활성 가스를 유입하는 희석 챔버로 이동시킨다. 희석 가스 포트를 통하여 불활성 가스를 유입한 불활성 가스의 흐름은, 희석 챔버의 출구로부터 벌크 물질을 유출하는데 충분함으로써 나노입자의 응집을 방지하기에 충분한 체적에서 벌크 물질을 가스 흐름의 나노입자로 응축한다.

대표도



특허청구의 범위

청구항 1

나노입자를 생성하기 위한 퍼니스 튜브에 있어서,

입력단부와 출력단부를 가지는 기화 챔버;

상기 퍼니스 튜브 근처에 배치되고, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 기화 챔버의 가스 흐름 내에 포함된 벌크 물질을 가열할 수 있는 가열부재; 및

입력단부와 출력단부를 가지는 회석 챔버로서, 기화 챔버의 출력단부는 회석 챔버의 입력단부에 연통하는 회석 챔버를 포함하며,

회석 챔버는, 회석 가스 포트를 더 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 생성하기 위한 퍼니스 튜브.

청구항 2

입력단부와 출력단부를 구비한 기화 챔버를 가지는 퍼니스 튜브와 연통하는 고체상 에어로졸 분산기;

상기 퍼니스 튜브에 근처에 배치되고, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 기화 챔버의 가스 흐름 내에 포함된 벌크 물질을 가열할 수 있는 가열부재; 및

입력단부와 출력단부를 가지는 회석 챔버로서, 기화 챔버의 출력단부는 회석 챔버의 입력단부에 연통하는 회석 챔버를 포함하며,

회석 챔버는, 회석 가스 포트를 더 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 3

제2항에 있어서, 고체상 에어로졸 분산기와 기화 챔버 사이에 배치되고, 기화 챔버에 유입하기 전에 가스 흐름의 일부분을 추출하는 추출 포트를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 4

제3항에 있어서, 추출 포트는, 비교적 큰 입자 크기를 가진 벌크 물질의 일부분을 기화 챔버에 유입하기 전에 분리하여 추출하는 분리기를 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 5

제4항에 있어서, 분리기는, 사이클론, 임팩트 장치, 또는 그 조합체인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 6

제1 불활성 가스 내의 벌크 물질의 흐름으로부터 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법에 있어서,

제1 불활성 가스 내의 벌크 입자의 흐름을 기화 챔버에 유입하는 단계;

벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도로 기화 챔버를 유지하는 단계;

기화된 입자를, 기화 챔버로부터 유출구를 가진 회석 챔버로 유입하고, 벌크 물질을 응축하기에 충분한 온도로 유출구를 유지하는 단계; 및

제2 불활성 가스의 흐름을, 회석 챔버의 회석 포트를 거쳐 회석 챔버로 유입하고, 불활성 가스의 흐름은, 유출구로부터 벌크 물질을 유출하는데 충분함으로써 나노입자의 응집을 방지하기에 충분한 체적의 가스 흐름에서 벌크 물질을 나노입자로 응축하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 7

제6항에 있어서, 벌크 물질을, 세륨 산화물, 탄소나노튜브, 티타늄 이산화물, C_{70} , C_{76} , 및 C_{84} 로 이루어진 그룹으로부터 선택하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 8

제6항에 있어서, 벌크 물질은 C_{60} 인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 9

제8항에 있어서, C_{60} 은, 기화 챔버에 유입될 때, 약 $1\mu m$ 내지 약 $1.5\mu m$ 공기역학적 질량 중위 입경(MMAD)의 입자 크기를 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 10

제8항에 있어서, C_{60} 은, 나노입자로서 응축될 때, 100nm 계수 중앙 입경(CMD)보다 작은 입자크기를 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 11

제6항에 있어서, 벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도는, 약 $500^{\circ}C$ 내지 약 $600^{\circ}C$ 인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 12

제6항에 있어서, 기화된 벌크 물질이 회석 챔버 내에 있는 체류시간이 30초 이하인 것을 보증하도록, 기화 챔버의 가스 유량과 회석 챔버의 가스 유량을 조절하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 13

제6항에 있어서, 제1, 2 불활성 가스를, 헬륨(He), 질소(N_2), 아르곤(Ar), 크립톤(Kr), 네온(Ne) 및 그 조합물의 그룹으로부터 선택하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 14

나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법에 있어서,

고체상 에어로졸 분산기의 제1 불활성 가스에서 벌크 입자의 흐름을 생성하는 단계;

불활성 가스 내의 벌크 입자의 흐름을, 고체상 에어로졸 분사기로부터 기화 챔버로 유입하는 단계;

벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도로 기화 챔버를 유지하는 단계;

기화된 입자를, 유출구를 가진 회석 챔버로 유입하고, 벌크 물질을 응축하기에 충분한 온도로 유출구를 유지하는 단계; 및

제2 불활성 가스의 흐름을, 회석 포트를 거쳐 회석 챔버로 유입하고, 불활성 가스의 흐름은 유출구로부터 벌크 물질을 유출하는데 충분함으로써 나노입자의 응집을 방지하기에 충분한 체적의 가스 흐름에서 벌크 물질을 나노입자로 응축하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 15

제14항에 있어서, 벌크 물질을 고체상 에어로졸 분산기에 유입하기 전에 벌크 물질을 분쇄함으로써 벌크 물질을 공정처리하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 16

제14항에 있어서, 벌크 물질을, 세륨 산화물, 탄소나노튜브, 티타늄 이산화물, C_{70} , C_{76} , 및 C_{84} 로 이루어진 그룹으로부터 선택하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 17

제14항에 있어서, 벌크 물질은 C_{60} 인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 18

제17항에 있어서, C_{60} 은, 기화 챔버에 유입될 때, 약 $1\mu m$ 내지 약 $1.5\mu m$ 공기역학적 질량 중위 입경(MMAD)의 입자 크기를 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 19

제17항에 있어서, C_{60} 은, 고체상 에어로졸 분산기에 유입될 때, 약 $1\mu m$ 내지 약 $5\mu m$ 공기역학적 질량 중위 입경(MMAD)의 입자 크기를 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 20

제17항에 있어서, C_{60} 은, 나노입자로서 응축될 때, 100nm 계수 중앙 입경(CMD)보다 작은 입자 크기를 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 21

제14항에 있어서, 벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도는, 약 $500^{\circ}C$ 내지 약 $600^{\circ}C$ 인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 22

제14항에 있어서, 기화된 벌크 물질이 회석 챔버 내에 있는 체류시간이 30초 이하인 것을 보증하도록, 기화 챔버로의 가스 유량과 회석 챔버로의 가스 유량을 조절하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 23

제14항에 있어서, 제1, 2 불활성 가스를, 헬륨(He), 질소(N_2), 아르곤(Ar), 크립톤(Kr), 네온(Ne) 및 그 조합물의 그룹으로부터 선택하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 24

제14항에 있어서, 기화 챔버에 유입하기 전에 고체상 에어로졸 분산기로부터의 가스 흐름의 일부분을 추출하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 25

제14항에 있어서, 고체상 에어로졸 분산기로부터의 가스 흐름을, 기화 챔버에 유입하기 전에 가스 흐름의 일부분을 추출하는 분리기로 향하게 하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 26

제25항에 있어서, 분리기는, 사이클론, 임팩트 장치, 또는 그 조합체인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 27

산소 풍부 환경에서 C_{60} 의 에어로졸을 고농도로 생성하기 위한 방법에 있어서,

고체상 에어로졸 분산기의 제1 불활성 가스에서 벌크 입자의 흐름을 생성하는 단계;

불활성 가스 내의 벌크 입자의 흐름을, 고체상 에어로졸 분사기로부터 기화 챔버로 유입하는 단계;

벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도로 기화 챔버를 유지하는 단계;

기화된 입자를, 유출구를 가진 회석 챔버로 유입하고, 벌크 물질을 응축하기에 충분한 온도로 유출구를 유지하는 단계;

제2 불활성 가스의 흐름을, 회석 포트를 거쳐 회석 챔버로 유입하고, 불활성 가스의 흐름은, 벌크 물질을 유출구로부터 유출하는데 충분함으로써 나노입자의 응집을 방지하기에 충분한 체적의 가스 흐름에서 벌크 물질을 나노입자로 응축하고, 산화를 방지하기에 충분한 온도로 나노입자를 냉각하는 단계; 및

산소의 흐름을 나노입자에 유입하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 C₆₀의 에어로졸을 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 28

제27항에 있어서, 제1, 2 불활성 가스를, 헬륨(He), 질소(N₂), 아르곤(Ar), 크립톤(Kr), 네온(Ne) 및 그 조합물의 그룹으로부터 선택하는 것을 특징으로 하는 C₆₀의 에어로졸을 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 29

제27항에 있어서, 제1, 2 불활성 가스를 주로 질소(N₂)로서 선택하고, 유입 산소량은, 결과적인 가스 흐름에서의 총 산소량이 약 19.5%보다 더 많도록 충분한 것을 특징으로 하는 C₆₀의 에어로졸을 고농도로 생성하기 위한 방법.

청구항 30

에어형(air-like) 환경에서 C₆₀의 나노입자의 에어로졸에 생물체를 노출시키기 위한 방법에 있어서,

고체상 에어로졸 분산기의 질소(N₂)에서 C₆₀의 벌크 입자의 흐름을 생성하는 단계;

질소(N₂) 내의 C₆₀ 벌크 입자의 흐름을, 고체상 에어로졸 분사기로부터 기화 챔버로 유입하는 단계;

C₆₀의 벌크 입자를 기화하기에 충분한 온도로 기화 챔버를 유지하는 단계;

기화된 C₆₀의 입자를, 유출구를 가진 회석 챔버로 유입하고, 기화된 C₆₀ 입자를 응축하여 C₆₀의 에어로졸을 형성하기에 충분한 온도로 유출구를 유지하는 단계;

질소(N₂)의 흐름을, 회석 포트를 거쳐 회석 챔버로 유입하고, 질소(N₂)의 흐름은, 기화된 C₆₀을 회석 챔버의 유출구로부터 유출하기에 충분함으로써 질소(N₂)의 흐름에서, 기화된 C₆₀을 응축하여 C₆₀의 에어로졸을 형성하되, 상기 질소(N₂)의 흐름은 C₆₀의 에어로졸의 응집을 방지하기에 충분한 체적을 가지고, 산화를 방지하기에 충분한 온도로 C₆₀의 에어로졸을 냉각하는 단계;

결과적인 가스 흐름의 총 산소량이 약 19.5%보다 더 많도록 충분한 양으로, C₆₀의 에어로졸에 산소의 흐름을 유입하는 단계; 및

결과적인 가스 흐름에서 C₆₀의 에어로졸에 생물체를 노출시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 에어형 환경에서의 C₆₀의 나노입자의 에어로졸에 생물체를 노출시키기 위한 방법.

청구항 31

나노입자를 생성하기 위한 퍼니스 튜브에 있어서,

입력단부와 출력단부를 가지는 기화 챔버;

상기 퍼니스 튜브 근처에 배치되고, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 기화 챔버의 가스 흐름

내에 포함된 벌크 물질을 가열할 수 있는 가열부재; 및

컵형 리시버와 출력단부를 가지는 회석 챔버로서, 기화 챔버의 출력단부는 회석 챔버의 컵형 리시버와 연통하는 회석 챔버를 포함하며,

회석 챔버는, 회석 가스 포트를 더 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 생성하기 위한 퍼니스 튜브.

청구항 32

입력단부와 출력단부를 구비한 기화 챔버를 가지는 퍼니스 튜브와 연통하는 고체상 에어로졸 분산기;

상기 퍼니스 튜브에 근처에 배치되고, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 기화 챔버의 가스 흐름 내에 포함된 벌크 물질을 가열할 수 있는 가열부재; 및

컵형 리시버와 출력단부를 가지는 회석 챔버로서, 기화 챔버의 출력단부는 회석 챔버의 컵형 리시버에 연통하는 회석 챔버를 포함하며,

회석 챔버는, 회석 가스 포트를 더 가지는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 33

제32항에 있어서, 고체상 에어로졸 분산기와 기화 챔버 사이에 배치되고, 기화 챔버에 유입하기 전에 가스 흐름의 일부분을 추출하는 추출 포트를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 34

제33항에 있어서, 추출 포트는, 비교적 큰 입자 크기를 가진 벌크 물질의 일부분을, 기화 챔버에 유입하기 전에 분리하여 추출하는 분리기를 포함하는 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

청구항 35

제34항에 있어서, 분리기는, 사이클론, 임팩트 장치, 또는 그 조합체인 것을 특징으로 하는 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치.

명세서

<1> 관련출원

<2> 본 발명은, 2006년 3월 3일에 출원된 미국 가출원 제60/779,199호 및 2006년 8월 10일에 출원된 미국 가출원 제 60/837,057호의 전체 내용을 우선권 주장하고, 참조로 포함하고 있다.

기술분야

<3> 본 발명은, 나노크기 입자(nano-sized particles)(이하, "나노입자"라 함)를 생성하기 위한 방법 및 장치에 관한 것이다. 이러한 유형에서, 이러한 물질은, 흡입 독성학 연구(inhalation toxicology studies), 제조 응용(manufacturing applications), 산업 안전 및 보건 연구(occupational safety and health studies), 및 약물전달시스템(drug delivery systems)을 포함하는, 고농도 및 고순도가 필요한 응용분야에 사용하기에 적합하지만, 이에 한정되지 않는다. 본 발명은, C₆₀ 에어로졸(aerosols)의 고농도 나노입자를 생성하는데 매우 적합하고 이를 가능케 한다.

<4>

배경기술

<5> 다수의 서로 다른 나노크기 물질(이하, "나노물질"이라 함)을 이미 소비자제품(consumer products)에 사용하고 있다는 사실에도 불구하고, 이러한 물질 상당수의 특정 독성을 결정하는 능력은, 다른 물질에 비하여 여전히 한계가 있다. 예를 들면, 1985년에 Kroto H.W., Heath J.R., O'Brien S.C., Curl R.F., 및 Smalley R.E.에 의해

네이처(Nature) 318 162에 기술된, 벅민스터 플러린(Buckminster fullerene), 즉 C_{60} (통상적으로 버키볼(bucky balls)이라고 함)의 초기 발견은, 상당한 연구를 활기 띠게 하였다. 하지만 버키볼(전형적으로 독성 연구에 사용되는 형태)의 에어로졸 생성에 관한 연구의 상당수는, 상(phase), 결정도(crystallinity), 반응도(reactivity), 형상(geometry), 물리적 및 화학적 특성과 같은 여러 특성을 특징짓는데 기울었다. 그러한 연구는, 예를 들면, 1993년에 David E. Mccready 및 Mikhail S. Alnajjar에 의해 "Powder data for Buckminster fullerene, C_{60} "의 제목으로 분말 회절(Powder Diffraction). 9(2), 1994년 6월호에 기술된 연구를 포함한다. C_{60} 에어로졸을 생성하는 이전의 몇몇 연구는, 톨루엔(toluene) 내에서의 C_{60} 용액 분무와, 뒤이은 에어로졸 흐름(aerosol stream)의 기화(vaporization) 및 액화(condensation)를 포함한다. 그러한 연구 중의 하나는, J. Jouttsensaari, P. Ahonen, U. Tapper, E.I. Kauppinen, J. Laurila, 및 V.T. Kuokkala에 의해 "Generation of nano phase fullerene particles via aerosol routes"의 제목으로 합성금속(Synthetic Metals)(1996) 85-88에 기술되어 있다. 그러한 접근방법은, 에어로졸화된 물질 내에 포함된 톨루엔이 흡입연구(inhalation studies)와 양립할 수 없기 때문에, 흡입연구를 위해 에어로졸을 생성하는데 일반적으로 바람직하지 않다.

<6> 이러한 나노물질의 독성에 대한 제한적인 연구에도 불구하고, 독성이 나노물질에 특유한 것일지도 모른다는 의심을 지지하는 여러 개의 특정 이유가 있다. 예를 들면, 2001년에 Kreuter, J.에 의해 "Nanoparticles systems for brain delivery of drugs"의 제목으로 Adv Drug Delivery Rev 47: 65-81에 기술된 논문에서, 나노물질이 더 큰 입자에 개방되지 않은 본체부(body)의 영역에 접근할 수 있음과, 나노입자가 혈액 뇌관문(blood-brain barrier)을 가로지를 수 있고, 모세혈관(capillaries)에서 새나올 수 있을 것이라는 증거가 있음을 제시하였다. 나노물질은, 큰 입자와 다른 메커니즘(mechanisms)을 통하여 들어갈지도 모르고, 입자상 물질(particulate matter)을 위한 통상적인 제거 경로를 새나갈지도 모른다. 또한 나노물질이 매우 높은 표면 대 체적 비를 가지고, 높은 표면자유에너지(surface-free energy)가 분자 오염원의 흡착을 용이하게 하여, 일반적으로 접근할 수 없는 본체부의 영역으로 그러한 분자 오염원에 잠재적인 루트(route)를 제공한다. 따라서 당해 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 공지된 바와 같이, 나노입자를 생성하기에 적합한 방법과 장치는 이로써 흡입연구에만 아니라, 이러한 나노입자와, 나노입자 내에 포함되거나 나노입자와 화학적으로 결합된 물질이, 다른 수단에 의해 쉽게 접근할 수 없는 본체부의 영역에 들어오는 어떠한 응용에도 유용하다. 따라서 당해 기술분야에서 나노입자를 생성하기에 적합한 방법과 장치가 요구된다.

<7>

발명의 상세한 설명

<8> 본 발명의 일 목적은, 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 방법 및 장치를 제공하는 것이다. 본 발명의 다른 목적은, 흡입 독성학 연구(inhalation toxicology studies)에 적합한 가스 흐름에서 벅민스터 플러린(Buckminster fullerene), 즉 C_{60} 의 나노입자를 생성하기 위한 방법을 제공하는 것이다.

<9> 나노입자를 고농도로 생성하기 위한 장치를 제공함으로써 이러한 목적과 다른 목적, 및 이점을 달성한다. 본 발명의 장치는, 고체상 에어로졸 분산기(solid aerosol disperser)에 사용한 것이 처음이다.

<10> 여기에서 사용된 바와 같이, "고체상 에어로졸 분산기(solid aerosol disperser)"라는 용어는, 가스 흐름에서 고체상 입자의 흐름을 제공하는 장치를 가리킨다. 따라서 본 발명에 사용하기에 적합한 고체상 에어 분산기(solid air disperser)는 현재 여러 판매업체에서 입수할 수가 있다. 예를 들면, 한정하지 않지만, 가스 흐름에서 입자 흐름을 생성하도록, TSI사(TSI Inc.)에서 입수할 수 있는 모델 3433 소규모 분말 분산기(Model 3433 Small Scale Powder Disperser)를, 단독으로 또는 플라스토머 테크놀로지(Plastomer Technologies)사에서 입수할 수 있는 트로스트 젬 티이 분쇄기(TROST™ Gem T mill)와 함께 사용하여도 좋다. 본 발명의 양수인인 바텔리 메모리얼 인스티튜트(Battelle Memorial Institute)(Columbus, Ohio)는 또한, 상업적으로 이용할 수 있고, 본 발명의 실시예에 매우 적합한 고체상 에어로졸 분산기를 입수할 수 있다.

<11> 이러한 상업적으로 이용할 수 있는 고체상 에어로졸 분산기를, 가스 흐름에서 고체상 입자의 흐름을 제공하도록 구성할 수 있더라도, 그 출력의 입자 크기는 본 발명의 목적을 충족하기에 충분히 작지 않다. 예를 들면, 한정하지 않지만, 먼저, 텍사스주 휴스턴시에 있는 SES 연구소가 공급하는 C_{60} 입자로 구성된, 상업적으로 이용할 수 있는 벌크 물질(bulk materials)을 분쇄함으로써 바텔리 메모리얼 인스티튜트(Columbus, Ohio)에서 이용할 수 있는 고체상 에어로졸 분산기는 약 6-6.5LPM의 질소 흐름에서 약 $1\mu m$ 내지 약 $1.51\mu m$ 공기역학적 중량 중위 입경(mass median aerodynamic diameter: MMAD)의 입자 크기를 가진 C_{60} 의 일정한 흐름을 제공할 수 있다. 본 발

명은, 이로써, 결과적인 입자가, 100nm 계수 중앙 입경(count median diameter: CMD)보다 작고, C_{60} 의 비정질상 또는 카본 블랙(carbon black)으로의 화학적 분해를 나타내지 않도록 순도를 유지하면서 그 입자를 더욱 축소하는 방법을 제공한다. 따라서 여기에서는, 본 발명에 의해 만들어진 "나노입자(nano sized particles)"를 100nm 계수 중앙 입경(CMD)보다 작은 계수 중앙 입경(CMD)을 가진 입자로서 정의한다.

- <12> 바텔리 메모리얼 인스티튜트에서 이용할 수 있는 고체상 에어로졸 분산기가 바람직하더라도, 당해 기술분야에서 통상의 지식과 본 명세서의 이점을 가진 자는, 가스 흐름에서 약 $1\mu\text{m}$ 내지 약 $1.51\mu\text{m}$ 공기역학적 중량 중위 입경(mass median aerodynamic diameter: MMAD)의 고체상 입자의 흐름을 제공하는 어떠한 에어로졸 분산기가 본 발명에서 사용하기에 적합하다는 것을 쉽게 알 것이다. 따라서 본 발명을, 어떠한 특정 판매업체가 제공하는 고체상 에어로졸 분산기에 한정하는 것으로 간주해서는 아니 된다.
- <13> 나노입자를 형성하는, 벌크 물질의 원료가 어떠한 것일지라도, 본 발명은, 고체상 에어로졸 분산기의 출력단의 일부 또는 전부를 퍼니스 튜브(furnace tube)의 기화 챔버(vaporization chamber)의 입력단과 연통하여 배치한다. 가열 부재가 기화 챔버에 근접하여 배치되는데, 상기 가열 부재는 바람직하게는 기화 챔버를 둘러싸고, 벌크 물질을 기체상으로 변환하기에 충분한 온도로 퍼니스 튜브 내의 벌크 물질을 가열하기에 적합한 온도로 유지한다. 여기에서 설명한 수준으로 퍼니스에 가열을 제공하는 다른 수단은, 직접 전도(direct conduction), 복사 가열(radiant heating), 가열부재를 통해서든지 퍼니스 내의 물질에 에너지를 전달하는 다른 수단을 통해서든지 가능하다.
- <14> 기화 챔버를 통과한 기화된 물질은, 퍼니스 튜브의 기화 챔버의 입력단부로 들어간다. 회석 챔버는, 벌크 물질이 서로 응집(agglomerating)하는 것을 방지하는 방법으로 벌크 물질이 퍼니스 튜브를 나오자마자 벌크 물질을 빠르게 응축(condense)하도록 구성된다. 이와 같이, 본 발명은 성공적으로 나노입자를 고농도와 고순도로 형성한다.
- <15> 퍼니스 튜브가, 회석 가스 포트를 통하여 회석 챔버에 유입되는 추가적인 가스 흐름을 가지기 때문에, 퍼니스 튜브는 벌크 물질을 응집하지 않은 채 벌크 물질을 응축한다. 회석 가스 포트를 통하여 유입된 많은 가스 흐름은, 회석 챔버를 빠르게 배기하는 역할을 함으로써, 가스 흐름의 속도를 크게 증가시키는 동시에, 기화된 물질을 회석 챔버의 출구에서 급속히 냉각시킨다. 기화된 물질이 가스 흐름 내에서 나노입자로 응축되면서도 서로 응집하지 않는 것은 이러한 급속한 냉각과 많은 가스 흐름의 결과이다. 이러한 목적을 달성하기 위해서는, 기화된 벌크 물질이 회석 챔버에 있는 체류시간을 최소화하는 것을 보증하도록, 기화 챔버에 유입하는 가스의 유량과, 회석 챔버에 유입하는 가스 유량을 조절한다. 예로서, 한정하지 않지만, 기화된 벌크 물질이 회석 챔버에 있는 체류시간이 30초 이하인 것이 바람직하고, 기화된 벌크 물질이 회석 챔버에 있는 체류시간이 5초 이하인 것이 더욱 바람직하다. 이와 같이, 본 발명은 가스 흐름에서 나노입자를 종래의 방법보다 더 높은 고농도로 형성한다.
- <16> 본 발명의 바람직한 실시예에서, 기화된 물질을 회석 포트를 통하여 신속히 전달하는 것은, 회석 챔버 내의 입력단부와, 회석 챔버의 출력단부로서 사용하는 컵형 리시버(cup receiver)를 제공함으로써 도움을 받는다. 일반적으로, "컵형 리시버"는, 일측 단부는 비교적 큰 입구를 가지고 있고, 타측 단부는 비교적 작은 출구를 가진 튜브이다.
- <17> 컵형 리시버는, 회석 챔버에 들어간 기화된 물질이 개방 공간의 최단 거리를 가로지르고, 그 다음에 컵형 리시버의 비교적 큰 통로에 들어가도록, 회석 챔버 내에 배치된다. 또한, 가스 포트를 통하여 유입된 추가적인 가스 흐름은 비교적 큰 입구를 가진 단부를 통해 컵형 리시버에 들어간다. 이와 같이, 가스 흐름과 기화된 물질은, 기화된 물질의 회석을 최소화하는 방식으로 컵형 리시버 내에서 화합된다. 따라서, 회석 물질이 가능한 한 빠르게 컵형 리시버를 통과하게 되고 출력단부에서 배기되어, 온도강하를 최대화하여 기화된 물질을 가능한 한 빠르게 냉각시킨다.
- <18> 바람직한 실시예의 가스 흐름 모델링(modeling)은, 회석 물질을, 본질적으로 선형 경로(linear pathway)를 따라 컵형 리시버를 통과시키고 이로써 온도강하를 최대화함으로써 기화된 물질을 가능한 한 빠르게 냉각시키는 것을 보여준다.
- <19> 당해 기술분야에서의 통상의 지식과 본 명세서의 이점을 가진 자가 아는 바와 같이, 본 발명은 또한, 순수하지 않은(less than pure) 나노입자의 생성, 여러 가지 입자크기, 및 여러 가지 입자크기분포를 가능케 한다. 예를 들면, 한정하지 않지만, C_{60} 의 입자를 형성할 때, 질량 유량(mass flow rate), 가스 유량(gas flow rate), 및 퍼니스 온도를 조절하는 것은, 본 발명의 장치에서 형성할 수 있는 순도, 입자크기, 및 입자크기분포에 영향을

줄 것이다. 표 1에 도시된 바와 같이, 입자크기와 순도 모두 퍼니스 튜브 온도에 의해 영향을 받는다. 따라서 본 발명이, 임의의 입자크기, 크기분포, 및 순도를 형성하도록 질량 유량, 가스 유량, 및 퍼니스 온도를 조절하는 모든 시스템을 포함하는 것으로 간주하여야만 한다. 당해 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자는, 독성학 연구와 화학적 제조와 같은 응용에서, 이러한 조절성이 실시자(practitioner)에게 다양한 생산품을 만드는 유연성을 제공할 것임을 알 것이다.

표 1

퍼니스 온도 (°C)	입자크기 (nm)	입자농도 μg/L	화학적 성질	비 고
500	50-60	2	순수한 C ₆₀	몇몇 대입자가 또한 관찰됨
550	50-60	2	순수한 C ₆₀	무시해도 좋은 대입자가 관찰됨(<0.3% N)
600	40-50	1.5-2	~90-95% C ₆₀	소입자이나 몇몇 흑연화가 검출됨
650	40-50	1.5-2	~80-99% C ₆₀	소입자이나 몇몇 흑연화가 검출됨
700	30-40	1.0-1.5	~50-70% C ₆₀	소입자, 더 적은 질량농도, 흑연화가 많음
800+	20-35	0.5-1.5	<50% C ₆₀	소입자, 낮은 질량농도, 고농도, 비순수한 C ₆₀

<20> 퍼니스를 통과하는 샘플 유량이 400ml/min로 일정한 상태에서 C₆₀ 분포에 대한 퍼니스 온도의 영향

<22> 또한, 본 발명은 고체상 에어로졸 분산기와 기화 챔버 사이에 배치된 추출 포트의 사용을 고려한다. 기화 챔버에 유입하기 전에 가스 흐름의 일부분을 추출하도록 추출 포트를 사용한다. 추출 포트는, 기화 챔버에 유입하기 전에, 비교적 큰 입자 크기를 가진 벌크 물질의 일부분을 분리하여 추출하는 분리기를 포함한다. 이것은, 퍼니스 튜브의 유입구에 입자를 유입하기 전에 입자 크기를 더 줄이는데 도움이 된다. 분리기는, 사이클론(cyclone), 임팩트 장치(impact device), 또는 그 조합체이어도 좋다.

<23> 본 발명의 방법이 C₆₀의 나노입자를 형성하는데 매우 적합하는 한, 본 발명에 의해 공정처리하여도 좋은 다른 물질은, 한정하지 아니 하지만, 세륨 산화물(cerium oxide), 탄소나노튜브(carbon nano tubes), 티타늄 이산화물(titanium dioxide), C₇₀, C₇₆, 및 C₈₄를 포함한다.

<24> 본 발명에 따라 C₆₀의 나노입자를 형성할 때에는, 벌크 물질이, 기화 챔버에 유입될 때, 약 1μm 내지 약 1.51μm 공기역학적 중량 중위 입경(mass median aerodynamic diameter: MMAD)의 입자 크기를 가지는 것이 바람직하다. C₆₀의 벌크 입자를 기화하도록 기화 챔버를 약 500°C 내지 약 600°C의 온도로 유지하는 것이 바람직하다.

<25> 벌크 물질을 고체상 에어로졸 분산기로부터 퍼니스 튜브로 반송하는데 사용된 가스(여기서, "제1 가스"라고 함)와, 회석 가스 포트를 거쳐 회석 챔버에 유입된 가스(여기서, "제2 가스"라고 함)는 모두 불활성(inert) 가스인 것이 바람직하다. 여기에서 사용된 바와 같이, "불활성(inert)"은, 간단하게는, 상기 가스가 벌크 물질 또는 벌크 물질로 형성된 나노입자와 반응하지 않는다는 것을 의미한다. 따라서 바람직한 불활성 가스로는, 한정하지 않지만, 헬륨(He), 질소(N₂), 아르곤(Ar), 크립톤(Kr), 네온(Ne) 및 그 조합물을 포함한다.

<26> 당해 기술분야에서 통상의 지식과 본 명세서의 이점을 가진 자는, 본 발명이, 종래 기술의 제약의 결과로서 이전에 실시할 수 없었던 (C₆₀과 같은) buckminster fullerene의 흡입 독성학 테스트를 가능케 한다. 본 발명을, 이러한 사용에 한정하는 것으로 간주하지 않아야 하지만, 본 발명이 본질적으로 에어(air)와 동일한, 산소 풍부 환경에서 C₆₀의 에어로졸을 고농도로 생성하는 것을 가능케 하기 때문에, 본 발명이 이러한 능력을 제공하는 것임을 알아야만 한다.

<27> 상기한 바와 같이, 제2 가스가 회석 챔버에 유입될 때, 제2 가스의 흐름은 출구로부터 벌크 물질을 배출하기에 충분함으로써 벌크 물질을 나노입자로 응축한다. 나노입자를, 그 다음에, 산화를 방지하기에 충분한 온도로 냉각하고, 게다가 나노입자를 산화하지 않은 채 산소 흐름을 유입하여도 좋다. 불활성 가스를 질소(N₂)로서 선택하고, 결과적인 가스 흐름 내의 총 산소량이 약 19.5%보다 더 많도록 충분한 양의 산소를 추가함으로써, 본 발명

은, 본질적으로 에어(air)와 동일한 가스 흐름에서 C_{60} 의 나노입자의 에어로졸을 생성하는 것을 가능케 한다. 물론, 에어 내에서 또한 발견되는 다른 미량의 가스를 또한 가스 흐름에 유입하여도 좋음으로써 결과적인 가스를 에어와 완벽한 조화를 이루게 하지만, 그러한 것은 일반적으로, 효과적인 독성학 연구에 필요하지 않다. 이러한 에어로졸에 생물체를 노출시킴으로써 벡민스터 풀러린(Buckminster fullerene)의 흡입 독성학 테스트를 가능케 한다.

실시예

- <55> C_{60} 나노입자의 에어로졸을 생성하는데 사용된 시스템의 최종적인 개략도가 도 12에 도시되어 있다.
- <56> 본 발명의 일 실시예를 설명하기 위하여, 텍사스주 휴스턴시에 있는 SES 연구소에 의해 공급된 C_{60} 입자를 이용하여 일련의 실험을 행하였다. 벌크 물질은 어두운 색상의 미세한 입자로 구성되었고 상온에서 보관되어 있었다. 벌크 물질을 생성기에 투입하기 전에 Wig-L-Bug(Crystal Laboratories, Garfield, NJ)에서 약 2분 동안 분쇄하였다.
- <57> 이러한 연구를 위한 C_{60} 에어로졸을 처음 생성하는데 사용된 고체상 기체 분산기(solid air disperser)는, 바텔 리 메모리얼 인스티튜트(Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio)에서 이용할 수가 있다. 도 2, 도 3a, 및 도 3b에 도시된 바와 같이, 고체상 기체 분산기는, 단일 분사식(single jet) 입자마찰챔버(Particle Attrition Chamber: PAC)(14)에 체결된 회전식 분진공급장치(rotary dust feed device)(10)로 구성된다.
- <58> 도 2에 도시된 바와 같이, 회전식 분진공급장치(10)는, 드럼(drum)(미도시됨), 본체부(body)(11), 캡부(cap)(12), 및 드럼 회전 드라이버(drum rotation driver)(13)로 구성된다. 작동 과정 동안에 회전하는 드럼은, 벌크 물질의 저장고(reservoir)로서 역할을 담당한다. 드럼의 회전은, 생성기 제어부에 의해 제어되는 압축기체구동형 밸브 밸브 드라이버(compressed air driven Valco valve driver)(VICI Valco Instruments Co., Houston, TX)에 의해 이루어진다. 드럼이 회전함에 따라, 드럼의 바닥부 상의 디스크(disk)에 있는 계측 포트(metering ports)에는 소량의 분말형 C_{60} 벌크 물질이 채워진다. 각각의 계측 포트의 바닥부에 있는 스테인레스 스틸 스크린(stainless steel screen)은, 반송가스(carrier gas)(질소)가 아래로부터 통과하는 것을 허용하면서 상기 물질이 포트를 통하여 낙하하는 것을 방지한다. 각각의 계측 포트는, 드라이버가 생성기 제어회로에 의해 작동할 때마다, 본체부의 반송가스 유입구와 순차적으로 정합된다.
- <59> 반송가스 솔레노이드 밸브를 생성기 제어부에 의해 개방하여, 포트로부터 벌크 물질을 내뿜어 질소 흐름 속으로 흩뜨리는 반송가스 토출(puff)을 형성한다. 생성기 제어부를 사용하여 회전 분속수(rotation cadence)와 질소토출시간을 조정함으로써 생성기의 출력을 조절한다.
- <60> 도 3의 (a) 및 (b)에 도시된 입자마찰챔버(Particle Attrition Chamber: PAC)(14)는, 벌크 물질에서 부유(浮遊) 분말의 입자 크기를 감소시키는 역할을 한다. 입자마찰챔버(14)는, 에어로졸 유입구 흐름(aerosol inlet flow)(17)에 대해 30psi와 90° 로 작동하는 에어 제트(air jet)를 추가한 사이클론 분리기(cyclone separator)와 유사하다. 에어 제트(15)는, 입자가 중앙의 에어로졸 유출구 포트(18)를 빠져나가기에 충분할 정도로 작을 때까지 입자 덩어리를 분쇄한다. 입자마찰챔버(14)를 빠져나가는 흐름의 일부분은, ~0.400 lpm이 퍼니스 튜브(1)(도 13 및 도 17에 도시됨)로 지나가도록, 빨아올려진다. 도 12를 참조하면, 생성기 사이폰(generator siphon)(20)을 사용한 빨아올림은, 티(t)자형 연결부(19)에서 발생하는데, 큰 입자를 분리하고 작은 입자를 퍼니스 튜브(1)로 보내는 부가효과가 발휘될 수도 있다. 티(t)자형 연결부(19)는, 큰 입자가 티(t)자형 연결부(19)에 충돌하고 이로써 빨아들여지는 반면에 작은 입자가 가스 흐름에 계속 남아서 퍼니스 튜브(1)를 향하게 되는 충격체제(impact regime)로서 작용함으로써 분리기로서 작용하는 효과를 가진다. 예로서, 한정하지 않지만, 사이클론과 같은 다른 장치를 분리기로서 사용할 수가 있었다.
- <61> 티(t)자형 연결부(19)를 빠져나온 에어로졸은, 도 13 및 도 17에 도시된 퍼니스 튜브(1)로 이동한다. 도 17에 도시된 바와 같이, 퍼니스 튜브(1)는, 유입구(2), 및 회석 챔버(4)와 연통하는 기화 챔버(3)를 포함하여 구성된다. 회석 챔버(4)는 유출구(5)와 가스 포트(6)를 가진다. 가열부재(7)는 퍼니스 튜브(1)를 둘러싼다. 이러한 실험장치에서, 기화 챔버(3)는, 직경이 2인치이고 길이가 12인치인 글라스(glass) 튜브였다. 회석 챔버(4)는, 직경이 2인치이고 길이가 2인치인 글라스 튜브였다. 기화 챔버(3)의 유입구(2)와 유출구(5)는 모두 3/8인치 글라스 튜브였다. 기화 챔버(3)와 회석 챔버(4) 사이의 통로(opening)가 또한 3/8인치이었다. 회석 챔버(4)의 가스 포트(6)는 1/4인치 튜브였다.

- <62> 가열부재(7)가 퍼니스 튜브(1)를 둘러싼다. 이러한 실험장치의 가열부재(7)는, 아이오와주에 있는 Bamstead International Dubuque사에 의해 공급된 상업용 퍼니스(모델명 F21135)이었다. 퍼니스는 일정 온도(550℃)로 유지되었고, 유입구(2)를 통과하는 유량은, C_{60} 에어로졸의 순간적인 기화를 보장하기에 충분한 ~ 0.400 lpm이었다. 가스 포트(6)에서 압축 질소를 ~ 0.500 lpm으로 유입함으로써 초래된 급속냉각은 나노에어로졸의 형성을 가져온다.
- <63> 도 13에는 바람직한 실시예의 일반적인 구조가 도시되어 있다. 도면에 도시된 바와 같이, 퍼니스 튜브(1)는, 유입구(2), 및 회석 챔버(4)와 연통된 기화 챔버(3)를 포함하여 구성된다. 회석 챔버(4)는, 출구 또는 유출구(5)와, 가스 포트(6)가 구비된 컵형 리시버(cup receiver)(8)를 가진다. 가열부재(7)가 퍼니스 튜브(1)를 둘러싼다. 퍼니스 튜브(1)의 양측 단부에서는, 버퍼부(9)가 퍼니스 튜브(1)의 내부를 주변 분위기로부터 격리시킨다.
- <64> 도 18, 도 19, 도 20 및 도 21은, 퍼니스 튜브(1)의 바람직한 실시예에서의 가스 흐름 모델(models)이다. 모델은, 미국 뉴햄프셔주 레바논(Lebanon)시에 있는 Fluent사의 Fluent[®] Computational Fluid Dynamics Package, Release 6.2.16(결합성 열전달을 가진 3차원, 배정도(double precision), 분산 솔버(segregated solver), 층류(laminar flow) 모델)에 의해 만들어진 것이다. 도 18은 퍼니스 튜브(1)의 바람직한 실시예의 3차원 모델이고, 도 19는 퍼니스 튜브(1) 내부의 온도 프로파일의 3차원도이고, 도 20은 퍼니스 튜브(1) 내부의 가스 속도 프로파일의 3차원도이고, 도 21은 퍼니스 튜브(1) 내부의 입자 궤적의 3차원도이다. 도면에 도시된 바와 같이, 컵형 리시버(8)를 통하여 본질적으로 선형 통로(linear pathway)를 따라 회석 물질을 이동시키고 이로써 온도 강하를 최대화함으로써 기화된 물질을 가능한 한 빠르게 냉각시킨다.
- <65> 캐스케이드 임팩터(cascade impactor)(In-Tox Products, Model No. 02-130/SMK, Albuquerque, NM), SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)(TSI Model 3034, Shoreview, MN)(도 5 및 도 14 참조), TEM 이미징(JEOL 2010F, Jeol, Peabody, MA)(도 6 및 도 7 참조), MOUDI 임팩터(MSP Corp, 125B NanoMOUDI, Shoreview, MN)(도 8 및 도 15 참조)를 사용하여, 본 발명의 방법 및 장치에 의해 만들어진 에어로졸의 크기분포를 측정하였다. 레이저 라만 적외선 분광기(Laser Raman Infrared Spectroscopy)(Spex Model 1877, Spex, Edison, NJ)(도 9 및 도 16 참조)와 고성능 액체 색층분석기(high performance liquid chromatography)(HPLC, Agilent 1100)(도 11 참조)를 사용하여 C_{60} 의 화학적 특성분석을 실시하였다.
- <66> 본 발명에 의해 만들어진 에어로졸의 샘플을 샘플링 포트(sampling port)(22)에서 포집하였다(도 12 참조). 4개의 다른 계기를 사용하여, 포집된 샘플의 입자크기분포를 분석하였다. 실험의 초기의 스테이지들에서, 원리의 증거를 입증하도록 8스테이지 머서 캐스케이드 임팩터(8 stage mercer cascade impactor)를 사용하였다. 임팩터의 최종 스테이지의 컷포인트(cut-point)가 ~ 230 nm이었다. 임팩터를 통과하는 유량이 약 1.645 lpm이었다. 캐스케이드 임팩터 스테이지는 실리콘 그리스(silicone grease)로 선코팅되었다(pre-coated). 고성능 액체 색층분석(High Performance Liquid Chromatography)을 사용하여 각각의 스테이지 필터(stage filter)를 분석하였다.
- <67> 후속 스테이지에서, SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)(TSI Model 303s Shoreview, MN)를 통하여 에어로졸을 표본추출(sampling)하였다(도 5 및 도 14 참조). SMPS는 입자의 전기적 이동도에 따라 입자를 분리한다. 모델 3034(Model 3034)는 10 내지 487nm의 전기적 이동도 입자의 크기 범위를 가진다. 에어로졸 흐름(aerosol stream)은, 계기 측정 범위를 벗어난 큰 입자($0.8\mu\text{m}$ 보다 큼)를 제거하는 싱글 스테이지 사이클론(single-stage cyclone)을 통과한다. 에어로졸은, 그 다음에, 높은 수준의 양이온과 음이온과 충돌하는 양극성 이온 중성화기(bipolar ion neutralizer)를 통과한다. 하전 입자와 중성 입자는, 전기적 이동도에 따라 입자들을 분리하는 DMA(differential mobility analyzer) 컬럼(column)으로 들어간다. 전기적 이동도는 입자 크기에 반비례하고, 그래서 이러한 특성의 측정은 입자 크기를 나타낸다. DMA(differential mobility analyzer)를 빠져나온 입자는, 먼저, 샘플 흐름 내의 부틸알콜(butylalcohol) 증기를 포획하는 포화기(saturator)를 통과한다. 제2 냉각 스테이지는, 증기를 입자 상에 응축시켜 입자를 쉽게 검출할 수 있는 크기로 성장시킨다. 이러한 입자를, 그 다음에, 집중형 레이저광(focused laser light)을 거쳐 상기 입자를 지나가게 함으로써 입자 농도를 측정하는 응축입자계수기(condensation particle counter)로 향하게 한다.
- <68> 주사 전자 현미경(SEM)(LEO 982 FE-SEM, Zeiss Thornwood, NY) 및 투과 전자 현미경(TEM)(JEOL 2010F, Jeol, Peabody, MA)을 사용하여 샘플을 또한 분석하였다(도 4 및 도 6 참조). 벌크 테스트 물질의 크기분포를 확인하도록, 벌크 물질의 주사 전자 현미경(SEM) 이미지와 실험의 초기 스테이지들 동안의 주사 전자 현미경(SEM) 이미지를 촬영하였다. 주사 전자 현미경(SEM)의 경우, 금 도금형 25mm 멤브레인 필터(gold plated 25mm membrane

filter)(Pal Gelman, NY) 상에 에어로졸을 수집하였다. 실험의 후속 스테이지 동안에, 샘플의 투과 전자 현미경(TEM) 이미지를 촬영하였다. 투과 전자 현미경(TEM)의 경우, 탄소 코팅 레이스형 구리 그리드(carbon coated lacy copper grid) 상에 샘플을 수집하였다. 상기 그리드 상에서 테스트 물질의 균일한 코팅층을 갖도록, 샘플을 충분한 시간 동안 수집하였다. 전계방출총(field emission gun)으로 현미경을 200KeV로 작동시켰다. 사용한 조성 분석 소프트웨어(compositional analysis software)는, 옥스퍼드 인스트루먼트(Oxford instruments)사의 아이엔시에이 엑스레이 에너지 분광학 시스템(INCA x-ray energy spectroscopy system)이었다.

<69> 미세 오피리스형 다단 임팩터(micro-orifice uniform deposit impactor)(MOUDI, MSP Corp, 125B NanoMOUDI, Shoreview, MN)를 사용하여 입자크기분포를 또한 측정하였다(도 8 및 도 15를 참조). 이러한 임팩터는, 10.0 lpm의 유입구 유량으로 작동할 때 명목상의 컷포인트가 10 μ m에서부터 10nm까지 변화하는 13개의 회전 스테이지를 가진다. 다단(MOUDI) 임팩터의 마지막 수개의 스테이지는, 커닝엄 슬립 코렉션(Cunningham slip correction)을 증가시키고, 이로써 그 스테이지들의 컷포인트를 감소시키는 저압(low pressure) 상태이다.

<70> 샘플링 포트(22)에서 테스트 물질의 화학적 순도를 확인하도록, 레이저 라만 적외선 분광학(Laser Raman Infrared spectroscopy), 엑스레이 회절(XRD), 및 고성능 액체 색층분석(HPLC)을 사용하였다. 프린스턴 인스트루먼트 엘렌/시시디 검출기(Princeton Instruments(Trenton, NJ) LN/CCD detector)가 장착된 스펙스 모델 1877 라만 분광계(Spex(Edison, NJ) Model 1877 Raman spectrometer)를 사용하여 후방산란 구조에서 라만 스펙트럼을 얻었다(도 9 및 도 16 참조). 여기(excitation)를 위하여, 코히런트 이노바 307 아르곤이온 레이저(Coherent(Santa Clara, CA)) Innova 307 Argon Ion Laser)의 488.0nm 라인을 사용하였다. 필터와 빔췘핑(beam chopping)의 조합체를 사용하여 샘플 연소(sample burning)를 방지하도록, 대부분의 측정을 위한 레이저 전력을 약 5mW로 줄였다. 대부분의 측정을 위한 슬릿 slit) 폭이 400 μ m이었고, 노출 시간이 500초였다. 필터지(filter paper)의 스펙트럼을 차감함으로써 스펙트럼을 배경보정하였다.

<71> 애질런트 1100 가변 파장 검출기(Agilent 1100 variable wavelength detector)가 장착된 애질런트 1100 고압 액체 크로마토그래프(Agilent 1100 high pressure liquid chromatograph: HPLC)를 사용하여 C₆₀의 검출을 또한 실시하였다(도 11 참조). 상기 검출기를, 330nm 파장과 0.1 min보다 큰 피크 폭으로 설정하였다. 이소 임계 분리(iso critical separation) 방법은, 코스모실 버키프리프 분석 컬럼(Cosmosil BuckyPrep analytic column)(25cm x 4.6cm ID; 5 μ m)에 이동상 톨루엔(mobile phase toluene)을 5 μ l 주입하는 것을 포함한다. 20분의 실행시간(run time)에서 이동상(mobile phase)의 유량을 1 ml/min로 설정하였고, C₆₀의 유지 시간이 ~8분이었다.

<72> 엑스레이 회절(XRD) 분석을 사용하여 C₆₀의 순도를 또한 확인하였다(도 1a 내지 도 1d, 및 도 10 참조). 3개의 샘플에서 엑스레이 회절(XRD) 스펙트럼을 얻었다. C₆₀ 벌크 분말, 나노 C₆₀ 및 마이크로 C₆₀에 대해 엑스레이 회절(XRD) 분석을 실시하였다. 40Kv/30mA의 구리 방사(Cu radiation)를 사용한 지멘스 D5000 Θ/Θ 회절계(Siemens D5000 Θ/Θ diffractometer)에서 모든 샘플을 실험하였다. 5° 내지 80°의 범위에 걸쳐 0.02°의 스텝 크기(step size)로 스캔을 하였다. 분말 샘플의 경우, 스캔 시간이 10시간인 한편 필터 샘플을 각기 36시간동안 스캔하여야 하였다. 도 1a 내지 도 1d는, 엑스레이 회절 분석을 이용한 C₆₀ 벌크 분말의 정성 분석(phase identification)을 나타낸다.

<73> 머서 캐스케이드 임팩터(Mercer cascade impactor) 분석은, 퍼니스 온도와 위치를 최적화하는 한, 실험의 초기 스테이지들 동안에 매우 유용하였다. 테스트의 초기 스테이지들 동안에, 벌크 물질의 크기분포를 측정하도록, 직렬의 튜브 퍼니스가 없는 상태에서 머서 캐스케이드 임팩터 샘플을 수집하였다. 입자마찰챔버(PAC) 내의 압축 질소의 상이한 압력에서 2개 샘플을 수집하였다. 표 2는, 얻은 결과의 공기역학적 질량 중위 입경(Mass Median Aerodynamic Diameter: MMAD) 및 기하학적 표준편차(geometric standard deviation: GSD)를 나타낸다.

표 2

실행 번호	PAC압력 (μ g/ l)	에어로졸 농도 (μ g/ l)	에어로졸 크기 분포 (MMAD/GSD)
1	20	87	1.16/2.43
2	40	19.3	0.92/2.18

<74> 도 5는, 2개의 상이한 배율의 필터의 주사 전자 현미경(SEM) 이미지를 나타낸다. 명확하게는, 투과 전자 현미경

(TEM)과 캐스케이드 임팩터(cascade impactor) 분석 둘 다에 의해 큰 응집체들을 관찰하였다.

<76> 그 다음에, 시스템 내에 퍼니스 튜브를 직렬로 설치하였고, 퍼니스 튜브 유출구에 있는 샘플링 포트에서 샘플을 수집하였다. 초기에는, 머서 캐스케이드 임팩터에서 샘플들을 수집하였다. 처음의 5개 스테이지들(490nm보다 큼)에서 적은 질량(전체 질량의 2%보다 작음)을 관찰한 채, 임팩터의 마지막 2개의 스테이지에서 대부분의 입자를 관찰하였다. 여섯 번째 스테이지의 컷포인트가 0.49 μ m이었고, 최종 스테이지(여덟번째 스테이지)의 컷포인트가 0.23 μ m이었다. 컷포인트가 각각 0.33 μ m, 0.23 μ m인 마지막 2개 스테이지에서 전체의 약 92%를 수집하였다. 입자 크기를 더 줄이도록 작동 변수의 몇몇을 변경하였고, 추가 특성분석을 위하여 다른 계기들을 사용하였다.

<77> 작은 입자 크기의 입자 크기 분포를 측정하도록 SMPS를 사용하였다. 기화 응축 프로세스는, 계수 평균 크기(count median size)가 36.6nm인 C₆₀ 에어로졸을 신뢰성 있고 재현성 있게 생성할 수 있었다. 표 3은, 안정적인 에어로졸 생성 동안에 3분의 표본추출기간 동안에 에어로졸 데이터를 요약하고, 도 6은, 3분의 표본추출 동안의 분포를 기반으로 한 입자 수를 나타낸다.

표 3

<78>

	입자 수	입경	입자 체적
중앙값(nm)	59.1	67.3	85.4
평균값(nm)	62.1	70.6	94.8
기하학적 평균값(nm)	58.0	66.3	86.3
모드(nm)	62.6	67.3	89.8
GSD	1.45	1.43	1.49
총 농도	4.66e05(#/cm ³)	28.9(mm/cm ³)	8.59e10(nm ³ /cm ³)

<79> SPMS 분석은, 총 입자 수의 99.7% 이상이 100nm의 전기적 이동도 입경보다 작다는 것을 나타내었다. 샘플들의 투과 전자 현미경(TEM) 이미지를 또한 촬영하였다. 도 7은, 2개의 상이한 해상도에서의 필터 샘플들의 투과 전자 현미경(TEM) 이미지를 나타낸다.

<80> 크기 분석을 위한 충분한 수량의 입자들을 제공하도록 그리드(grid)의 5개 이미지를 25KX 배율로 촬영하였다. 사이언 이미지 이미징 및 분석 프로그램(Scion image imaging and analysis program)(Gaithersburg, MD)을 사용하여 이러한 이미지를 분석하였다. 도 8은, 이러한 정보를 이용하여 얻은 칼레이더그래프 막대그래프(Kaleidagraph histogram)를 나타낸다. 평균입자크기가 ~24.6nm인 것으로 관찰되었다.

<81> 입경분포(mass size distribution)를 측정하도록 샘플들을 또한 미세 오피리스형 다단 임팩터(MOUDI impactor)를 통하여 실험하였다. 미세 오피리스형 다단 임팩터(MOUDI impactor)는, 컷포인트가 10 μ m에서부터 10nm까지의 범위에 있는 13개 스테이지들을 가진다. 표본추출 동안에 스테이지들의 회전은, 필터 상에 테스트 물질을 균일하게 적층하는데 도움이 된다. 미세 오피리스형 다단 임팩터(MOUDI impactor)와 SMPS를, 표본추출 포트로부터 동일한 거리에 배치하였고, 이러한 계측기 둘다가 동일한 시간 동안에 동시에 표본추출하였다. 얻은 결과를 서로 비교하였고, 결과는 앞서 보고된 문헌과 양호하게 일치하였다.

<82> 도 9는, 20분의 표본추출 기간 동안에 ~10LPM로 얻은 미세 오피리스형 다단 임팩터 질량 분포(MOUDI mass distribution)를 나타낸다. 각 스테이지의 명목상의 단면 입경(cut diameter)에 대해 누적 퍼센트 질량(cumulative percent mass)을 플롯(plot)하였고, 미세 오피리스형 다단 임팩터 질량 분포가 ~25nm인 것으로 관찰되었다.

<83> 표본추출 포트(22)에서 C₆₀의 화학적 순도를 보증하도록 테스트를 또한 실시하였다. C₆₀가, 고온으로 가열될 때, 비정질 탄소(amorphous carbon)로 분해하는 것을 제안한, 앞서 보고된 문헌이 있었다.

<84> 도 10은, 나노크기 C₆₀ 에어로졸과 마이크로크기 C₆₀ 에어로졸에 대하여 얻은 라만 스펙트럼을 나타낸다. 벌크 C₆₀ 분말의 스펙트럼을 또한 동일한 플롯에 나타내었다. 샘플번호 010906-2가 나노크기 C₆₀ 입자의 스펙트럼을 나타내는 한편 샘플번호 010906-5가 마이크로크기 C₆₀ 입자의 스펙트럼을 나타낸다.

<85> C₆₀의 화학적 순도를 확인하기 위하여, 고성능 액체 색층분석(high performance liquid chromatography: HPLC)을 규칙적으로 실행하였다. 중량 측정으로 분석하였고 그 다음에 톨루엔 내에서 용해하여 C₆₀을 추출한 테프론

필터(Teflon filter)에서 샘플을 수집하였다. 이러한 용액에 대한 고성능 액체 색층분석(HPLC) 분석법은, 필터에 존재하는 C₆₀의 질량을 제공한다. 샘플에 존재하는 C₆₀ 이외에 다른 어떠한 것도 없다는 것을 보증하도록, 이러한 질량을, 중량에 의해 측정된 질량과 비교하였다. 600℃ 이상의 퍼니스 온도에서의 결과는, 샘플에 존재하는 C₆₀ 이외에 다른 어떠한 것이 존재하는 것을 나타내는 반면에, 500℃의 퍼니스 온도에서는, 중량에 의해 측정된 질량 대 고성능 액체 색층분석(HPLC) 측정된 C₆₀ 질량의 비율이 1에 근사한 것으로 관찰되었다. 도 11은, C₆₀ 표준과, 수집된 필터 샘플을 사용하여 얻은 전형적인 고성능 액체 색층분석(HPLC) 스펙트럼을 나타낸다.

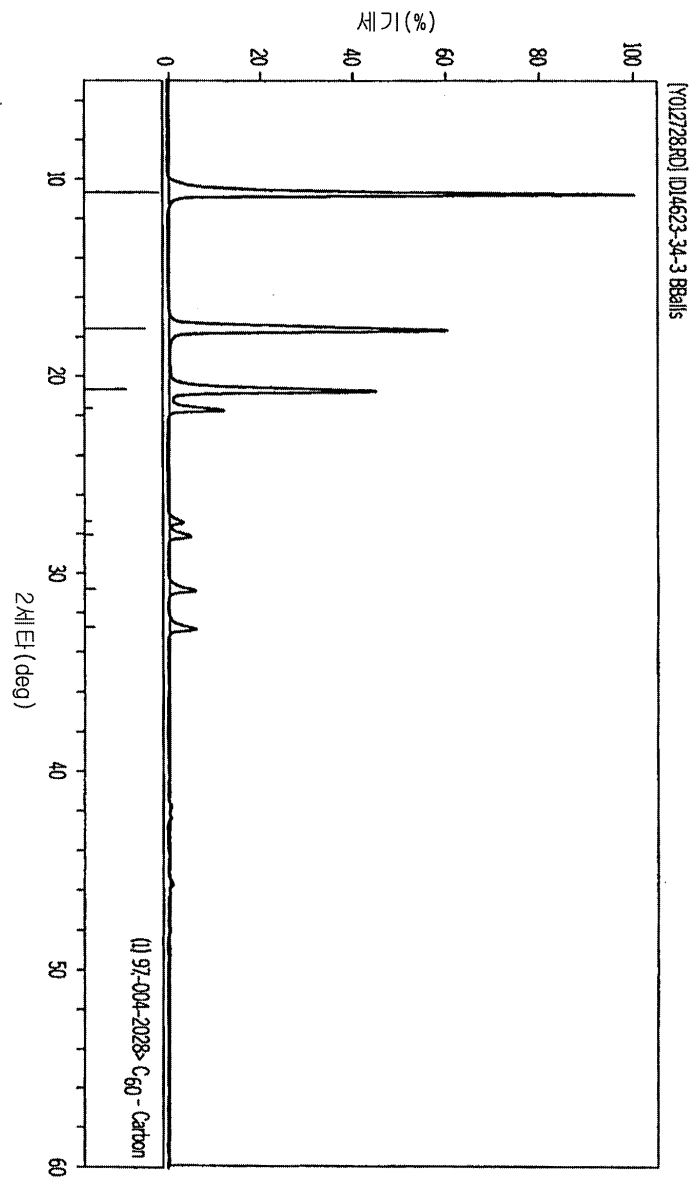
도면의 간단한 설명

- <28> 본 발명의 실시예의 이하의 상세한 설명은, 첨부된 도면을 참조할 때, 더욱 용이하게 이해될 것이다.
- <29> 도 1a는, 엑스레이 회절 분석법(X-ray Diffraction Analysis)을 이용한 C₆₀ buckminsterfullerene 벌크 파우더(Buckminster fullerene bulk powder)의 정성분석(phase identification)을 나타낸 그래프이다.
- <30> 도 1b는, C₆₀ 샘플의 순도를 확인하는 엑스레이 회절(X-ray Diffraction: XRD) 스펙트럼(spectrum)의 확대도를 나타낸 그래프이다.
- <31> 도 1c는, C₆₀ 샘플의 개선(refinement)을 나타낸 그래프이다.
- <32> 도 1d는, 엑스레이 회절(XRD)을 사용한 필터(filter) 상의 나노입자성(nanoparticulate) C₆₀의 정성분석을 나타낸 그래프이다.
- <33> 도 1e는, 엑스레이 회절(XRD)을 이용한 필터 상의 마이크로입자성 C₆₀의 정성분석을 나타낸 그래프이다.
- <34> 도 2는, 드럼 드라이버(drum driver), 본체부(body), 및 캡부(cap)를 나타낸 완전하게 조립된 회전식 분진 생성기(rotary dust generator)를 나타낸다.
- <35> 도 3의 (a)는, 입자마찰챔버(particle attrition chamber: PAC)의 사시도이다.
- <36> 도 3의 (b)는, 입자마찰챔버(particle attrition chamber: PAC)의 개략도이다.
- <37> 도 4는, 퍼니스(furnace)를 사용하지 않은 C₆₀ 에어로졸의 2개의 주사 전자 현미경(scanning electron microscope: SEM) 이미지이다.
- <38> 도 5는, SMPS(scanning mobility particle sizer) 유입구에서의 농도(y축) 대 입경(x축)을 나타낸 그래프이다.
- <39> 도 6은, 퍼니스가 직렬 배열된 상태에서의 필터 샘플의 2개의 투과 전자 현미경(transmission electron microscope: TEM) 이미지이다.
- <40> 도 7은, 투과 전자 현미경(TEM) 이미지에 적용된 사이언 이미징 소프트웨어(Scion imaging software)를 이용하여 획득한 막대그래프이다.
- <41> 도 8은, 미세 오픈리스형 다단 임팩터(micro-orifice uniform deposit impactor: MOUDI) 질량 분포(mass distribution)를 나타내는 그래프이다.
- <42> 도 9는, 퍼니스 튜브의 2개의 상이한 온도에서의 라만 스펙트럼(Raman spectrum)을 나타낸 그래프이다.
- <43> 도 10은, 엑스레이 광전자 분광학(X-ray photoelectron spectroscopy: XPS) 광전자 스펙트럼을 나타낸 그래프이다.
- <44> 도 11은, C₆₀ 표준과 샘플의 전형적인 고성능 액체 색층분석(high performance liquid chromatography: HPLC) 스펙트럼을 나타낸 그래프이다.
- <45> 도 12는, 본 발명의 바람직한 실시예의 조립체를 나타낸 개략도이다.
- <46> 도 13은, 퍼니스 튜브의 구조를 나타낸 개략도이다.
- <47> 도 14는, SMPS(scanning mobility particle sizer)를 이용하여 얻은 테스트(test) 에어로졸의 입자크기분포를 나타낸 그래프이다.

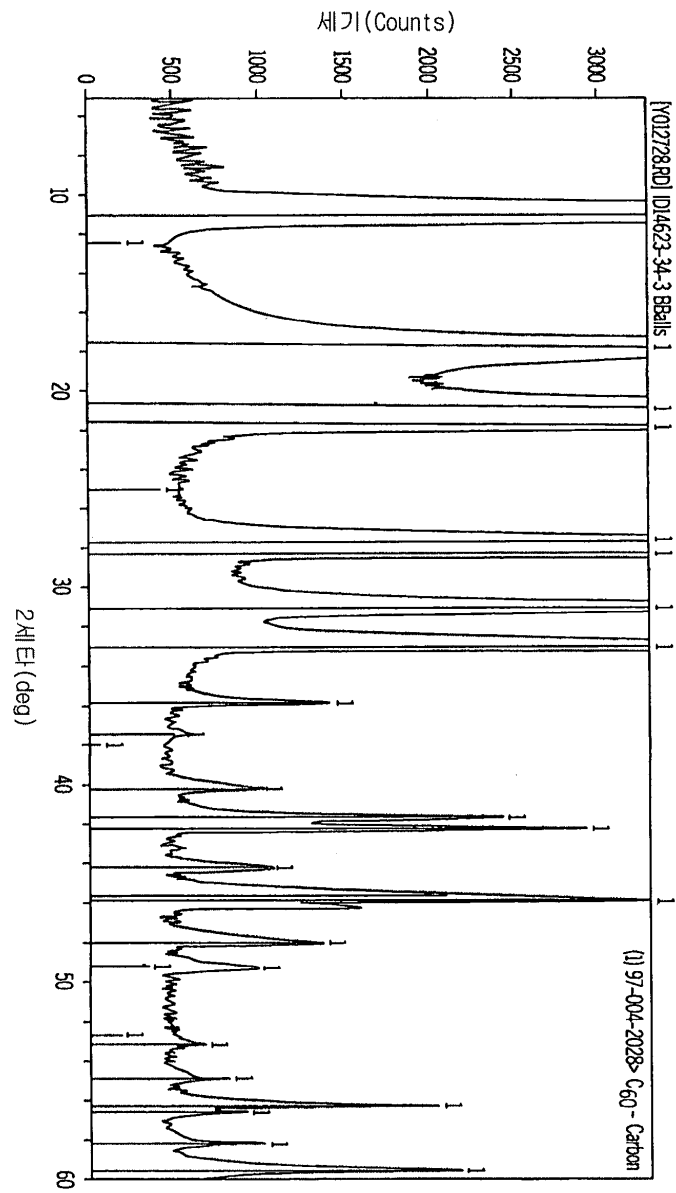
- <48> 도 15는, 미세 오피리스형 다단 임팩터(MOUDI)를 이용하여 얻은 테스트(test) 에어로졸의 입자크기분포를 나타낸 그래프이다.
- <49> 도 16은, 라만 분광학(Raman spectroscopy)을 이용한 화학적 특성을 나타낸 그래프이다.
- <50> 도 17은, 퍼니스 튜브의 바람직한 실시예의 구조를 나타낸 개략도이다.
- <51> 도 18은, 미국 뉴햄프셔주 레바논(Lebanon)시에 있는 Fluent사의 Fluent[®] Computational Fluid Dynamics Package, Release 6.2.16(결합성 열전달을 가진 3차원, 배정도(double precision), 분산 솔버(segregated solver), 층류(laminar flow) 모델)에 의해 만들어진 퍼니스 튜브의 바람직한 실시예의 3차원 모델(model)이다.
- <52> 도 19는, 미국 뉴햄프셔주 레바논(Lebanon)시에 있는 Fluent사의 Fluent[®] Computational Fluid Dynamics Package, Release 6.2.16(결합성 열전달을 가진 3차원, 배정도(double precision), 분산 솔버(segregated solver), 층류(laminar flow) 모델)에 의해 만들어진 퍼니스 튜브의 바람직한 실시예의 내부 온도 프로파일(profile)의 3차원도이다.
- <53> 도 20은, 미국 뉴햄프셔주 레바논(Lebanon)시에 있는 Fluent사의 Fluent[®] Computational Fluid Dynamics Package, Release 6.2.16(결합성 열전달을 가진 3차원, 배정도(double precision), 분산 솔버(segregated solver), 층류(laminar flow) 모델)에 의해 만들어진 퍼니스 튜브의 바람직한 실시예의 내부 가스 속도 프로파일의 3차원도이다.
- <54> 도 21은, 미국 뉴햄프셔주 레바논(Lebanon)시에 있는 Fluent사의 Fluent[®] Computational Fluid Dynamics Package, Release 6.2.16(결합성 열전달을 가진 3차원, 배정도(double precision), 분산 솔버(segregated solver), 층류(laminar flow) 모델)에 의해 만들어진 퍼니스 튜브의 바람직한 실시예의 내부 입자 궤적의 3차원도이다.

도면

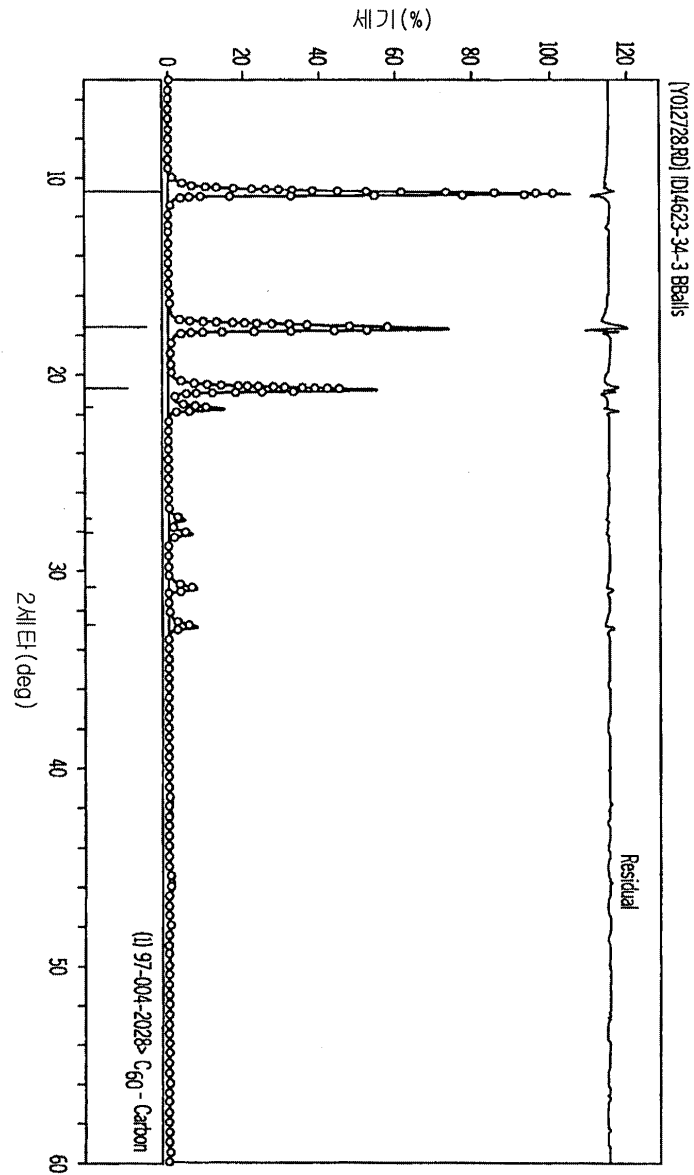
도면1a



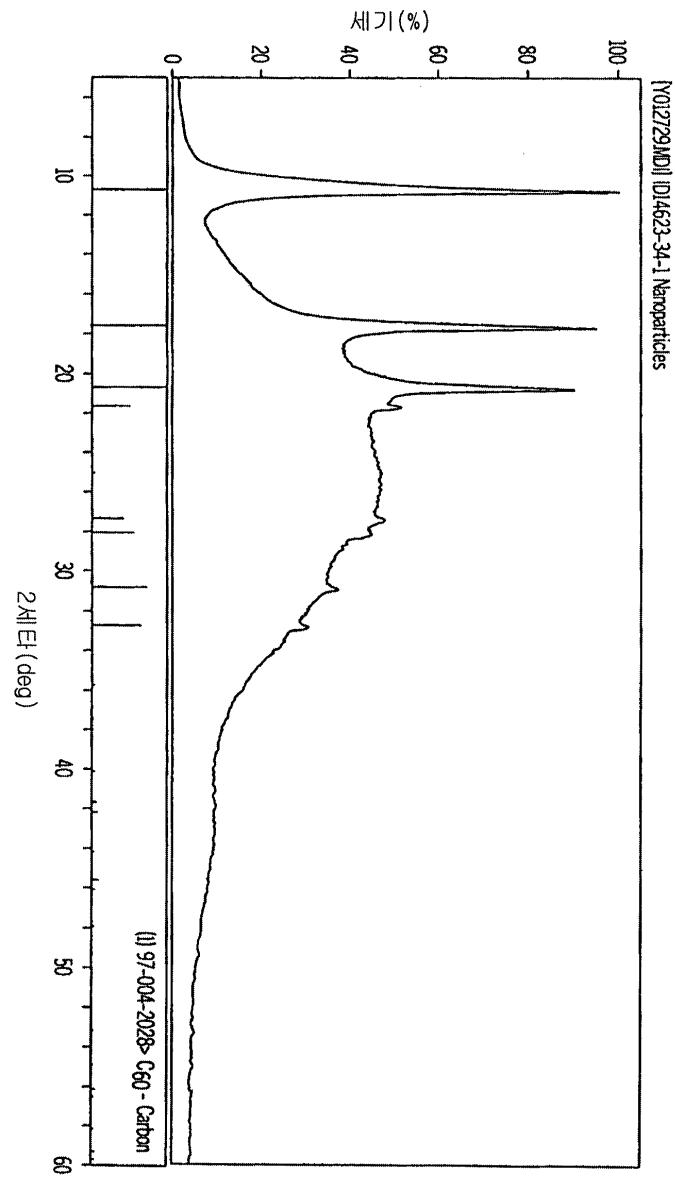
도면1b



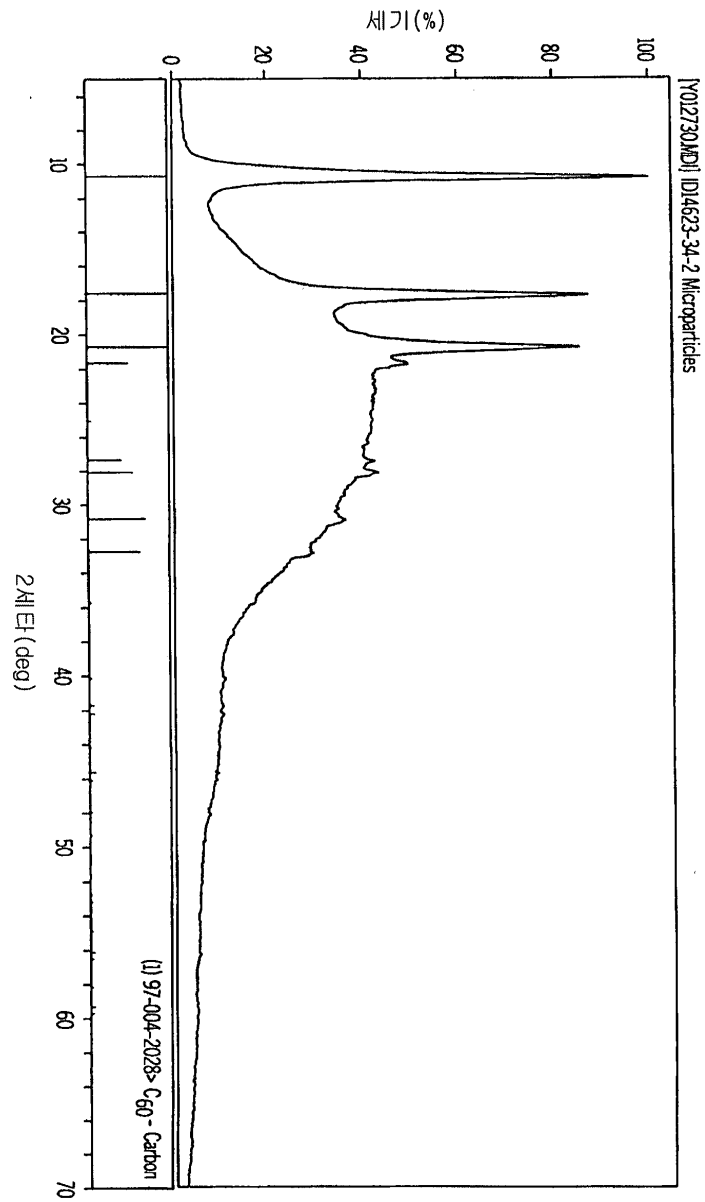
도면1c



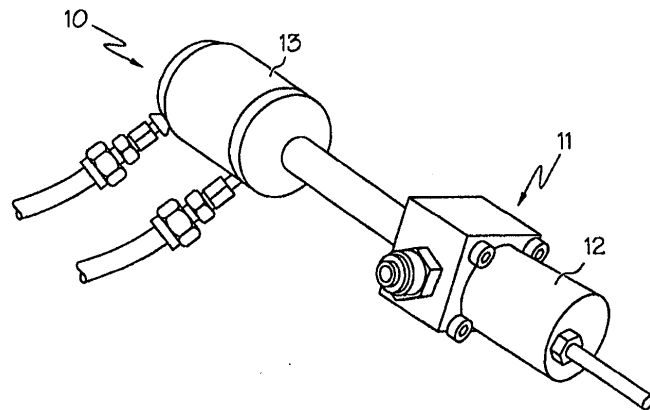
도면1d



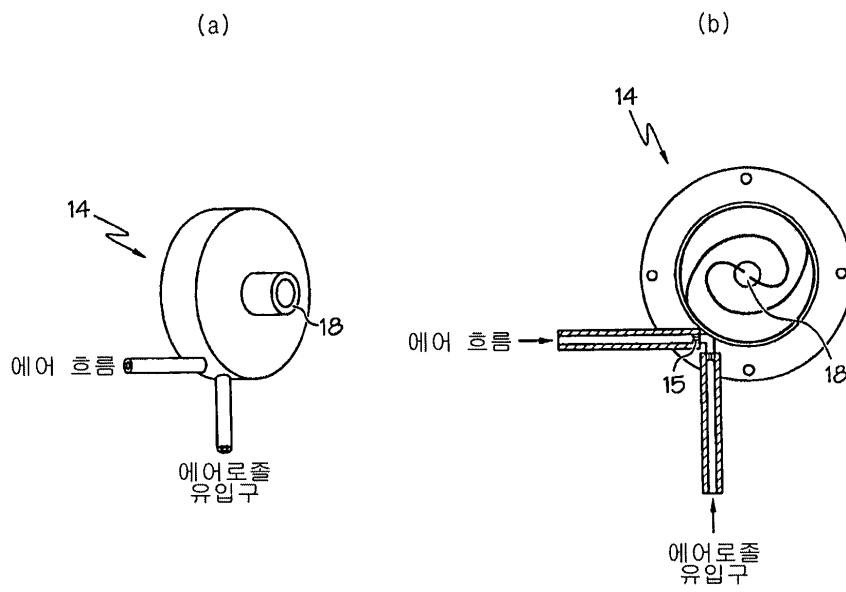
도면1e



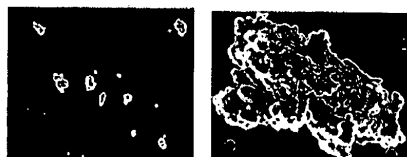
도면2



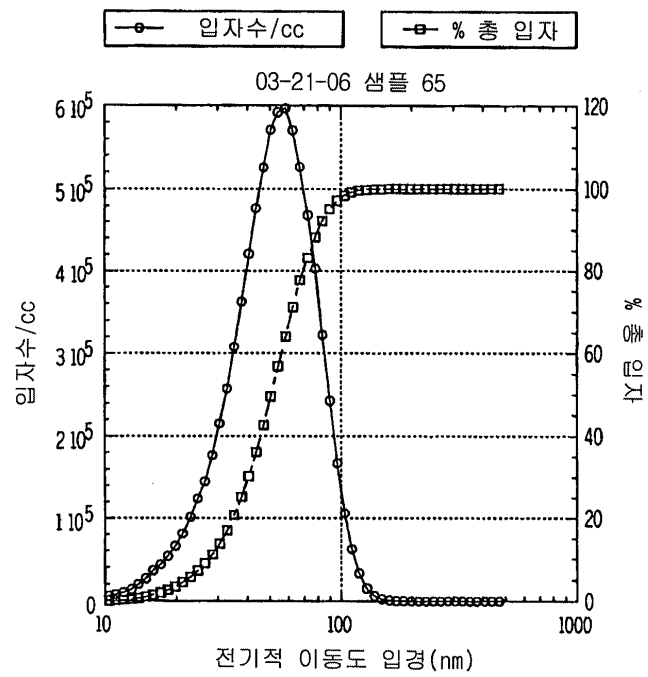
도면3



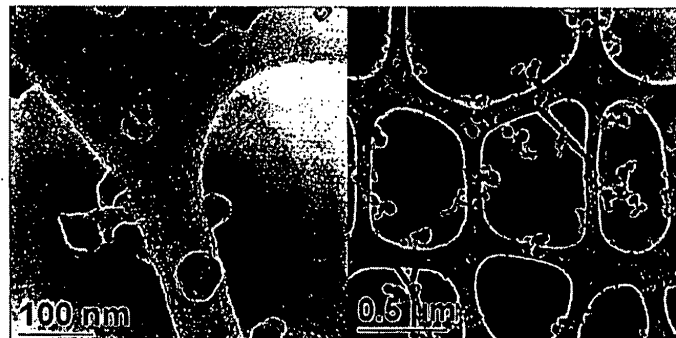
도면4



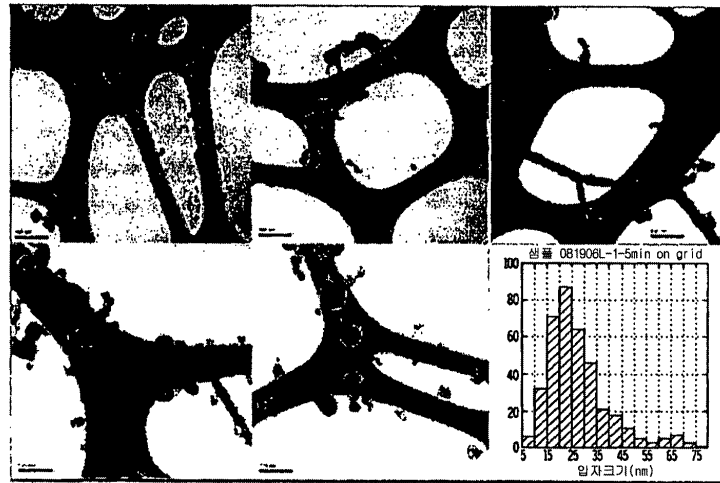
도면5



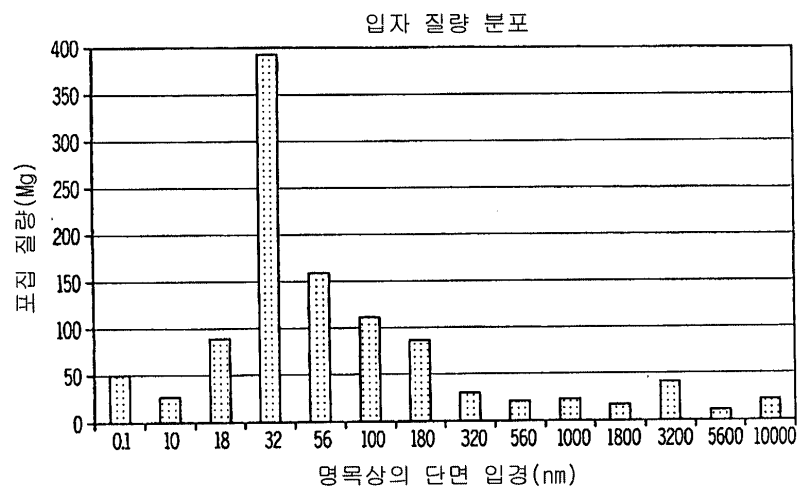
도면6



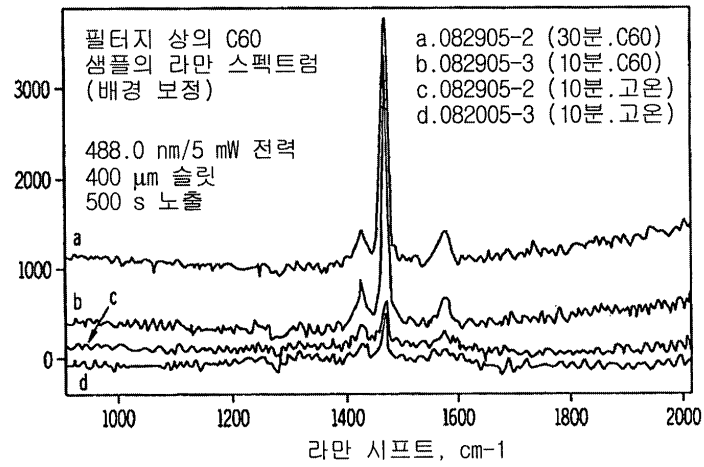
도면7



도면8

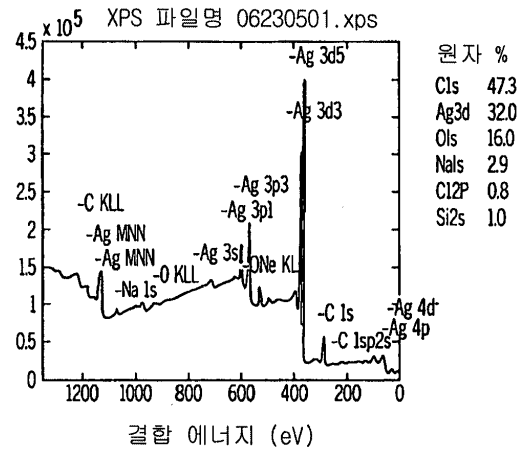


도면9

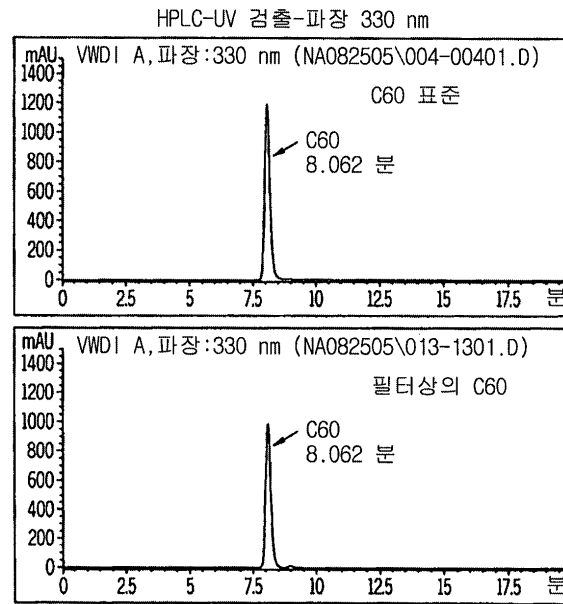


도면10

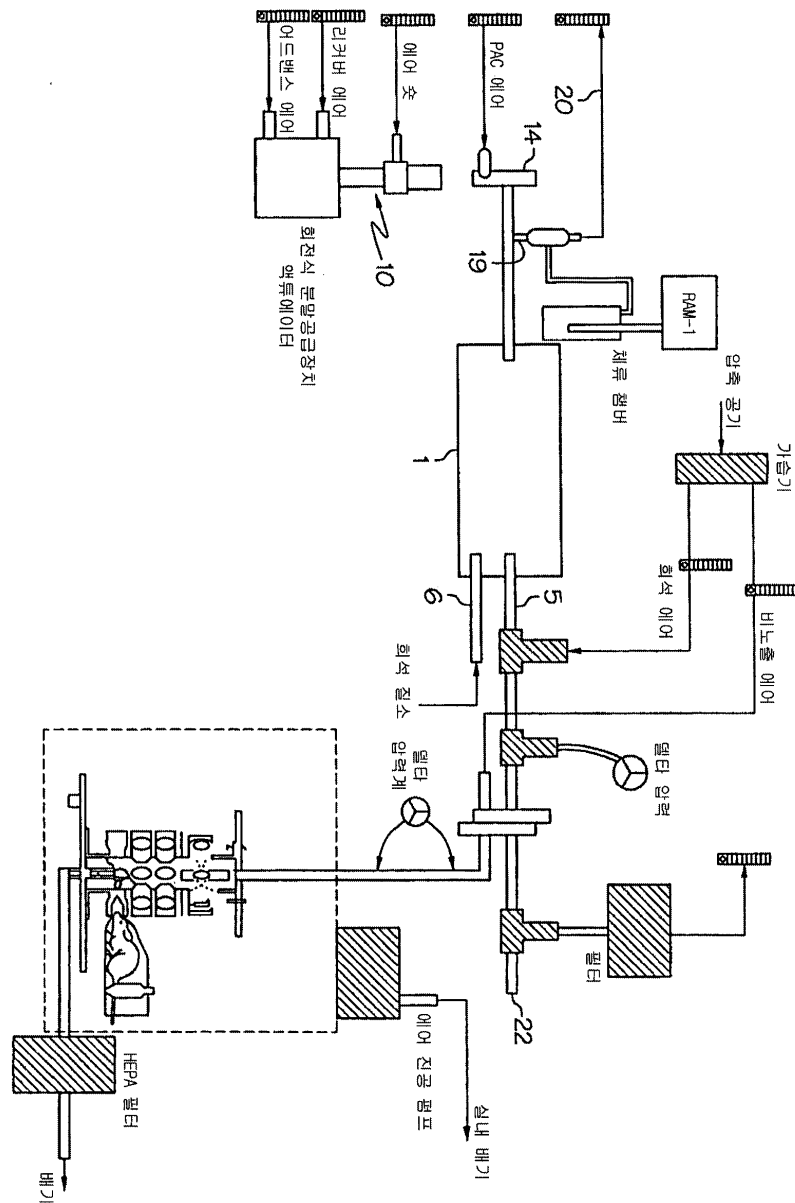
샘플 081605-1의 화이트 스캔 광전자 방출 스펙트럼



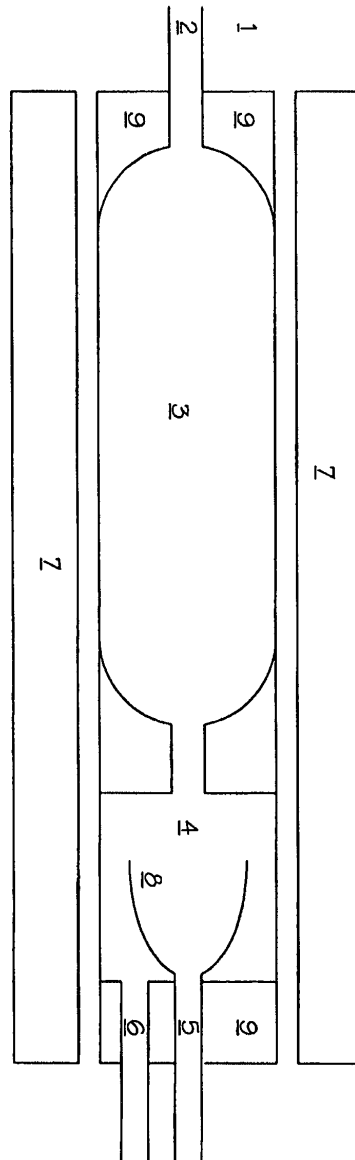
도면11



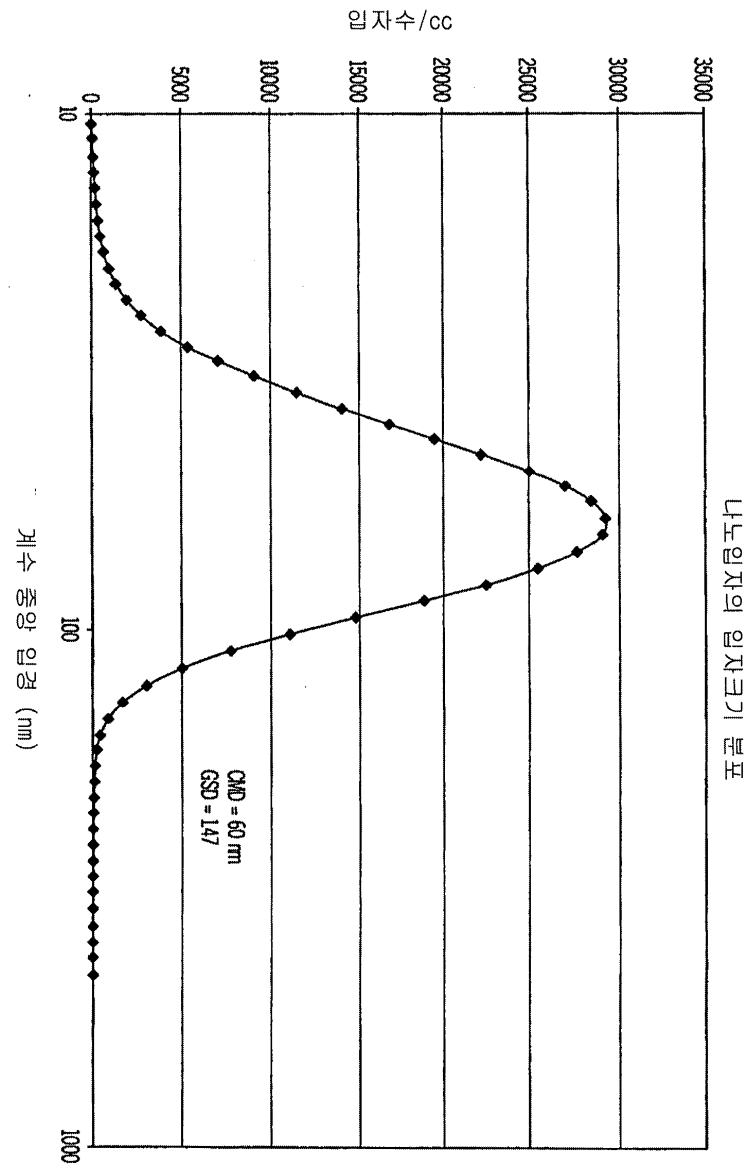
도면12



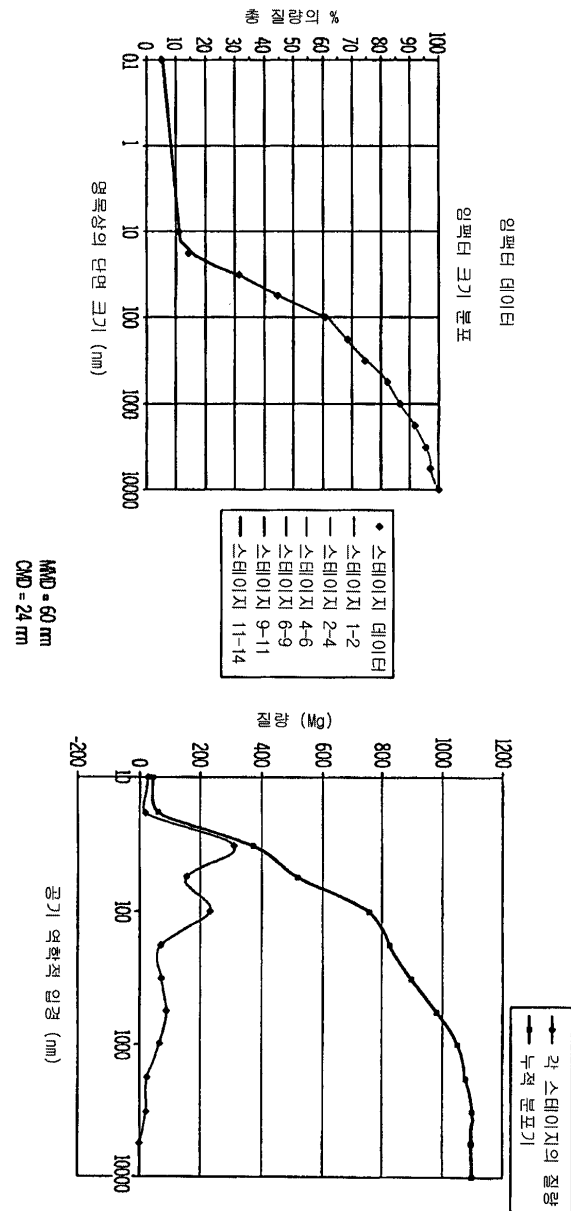
도면13



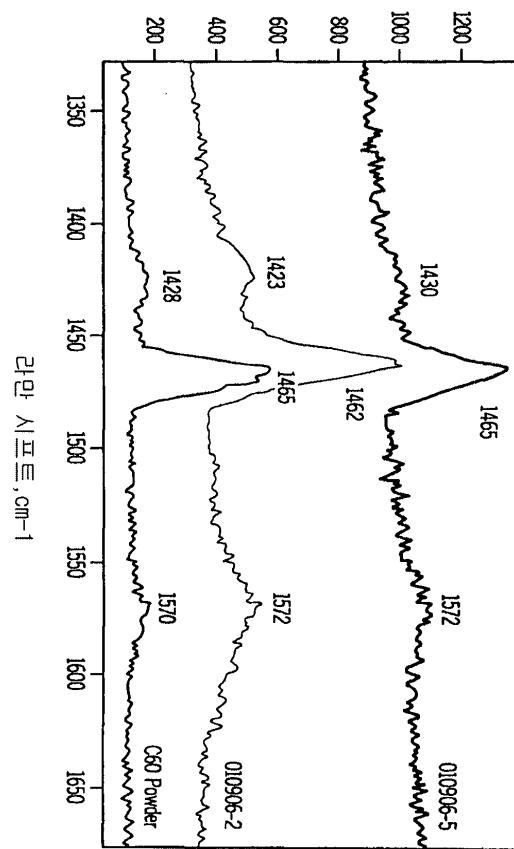
도면14



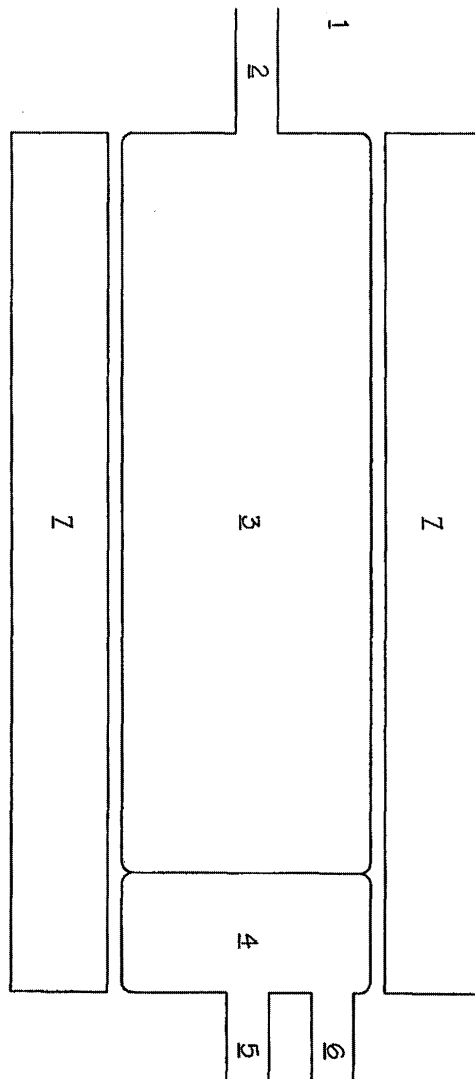
도면15



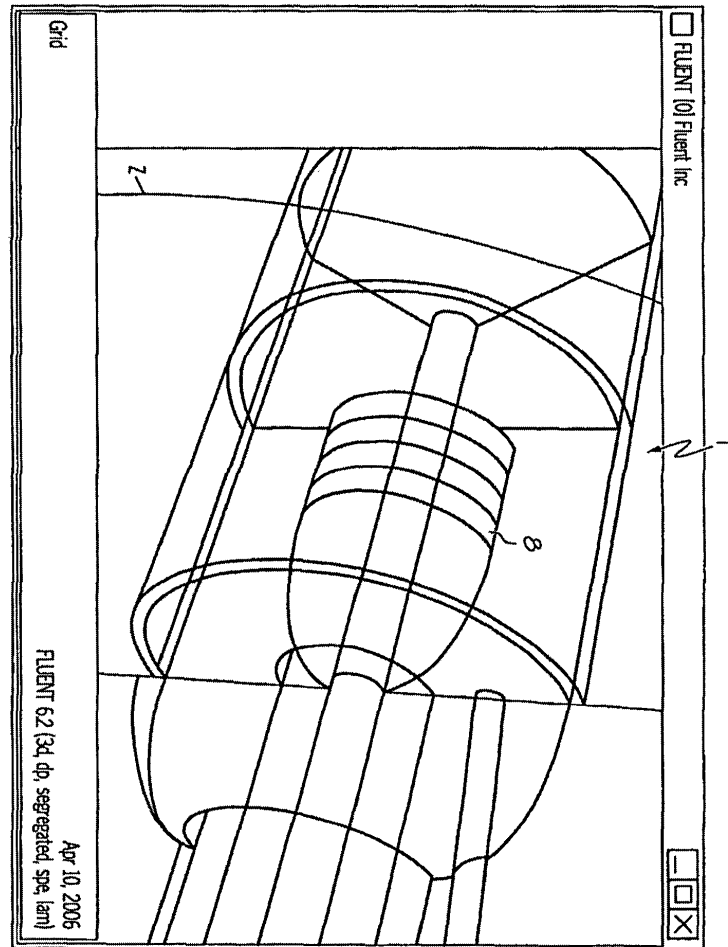
도면16



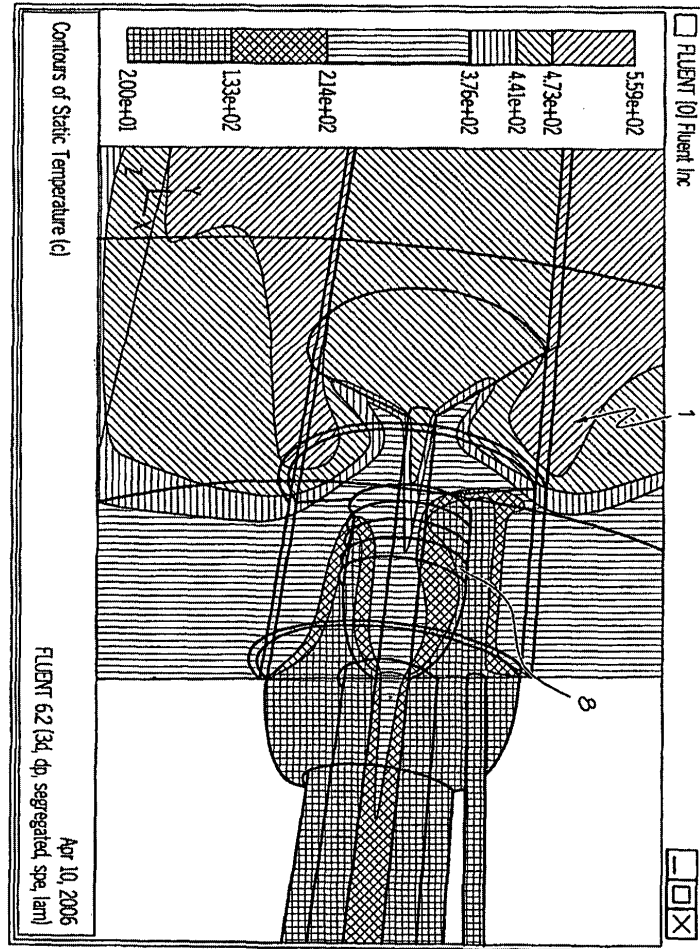
도면17



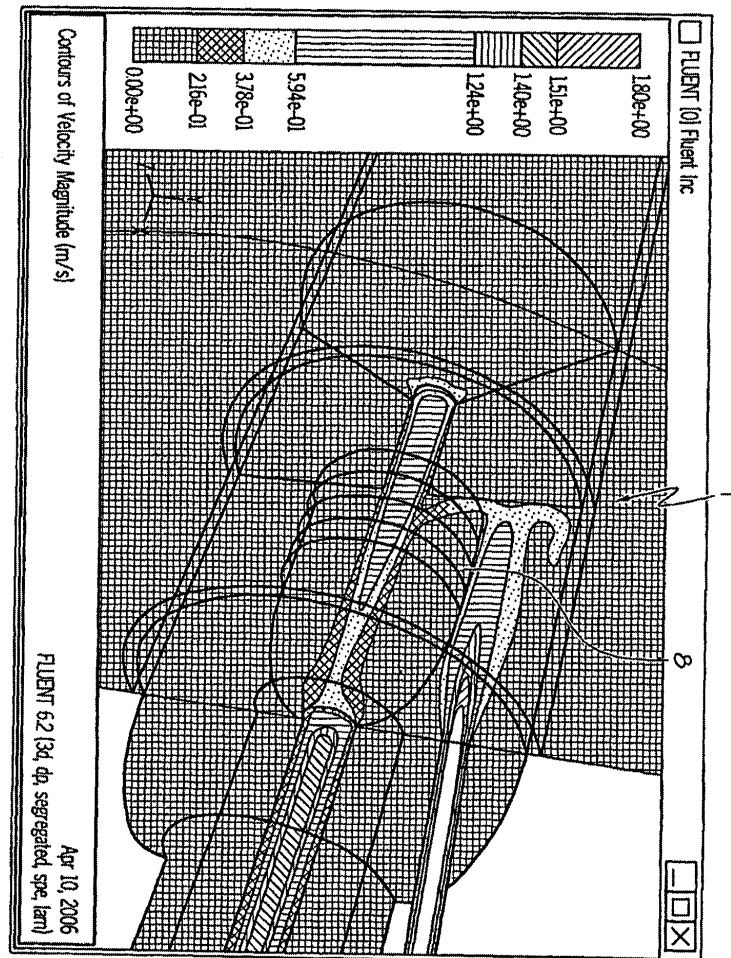
도면18



도면19



도면20



도면21

