

	(19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2014-0028449 (43) 공개일자 2014년03월10일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) C01B 31/02 (2006.01) B01J 2/08 (2006.01) B01J 8/20 (2006.01)		(71) 출원인 서강대학교산학협력단 서울특별시 마포구 백범로 35 (신수동, 서강대학교)
(21) 출원번호	10-2012-0094773	(72) 발명자 문준혁 서울 양천구 목동남로2길 60-7, 103동 603호 (신정동, 양천중앙하이츠)
(22) 출원일자	2012년08월29일	강다영 인천 남동구 논고개로68번길 49, 101동 2203호 (논현동, 논현힐스테이트아파트)
심사청구일자	2012년08월29일	(74) 대리인 특허법인엠에이피에스

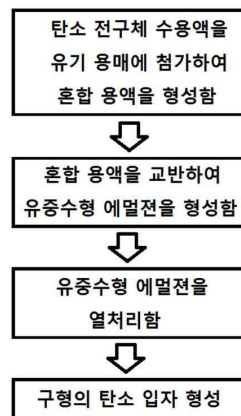
전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 발명의 명칭 구형의 탄소 입자, 및 이의 제조 방법

(57) 요약

구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자, 및 유증수형 에멀전을 이용하여 상기 구형의 탄소 입자 및 상기 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하는 방법에 관한 것이다.

대표도 - 도1



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 20110030293

부처명 교육과학기술부

연구사업명 기후변화대응 기초원천기술개발사업

연구과제명 3차원 응력분산구조의 다원계 전극소재 제조기술개발

기 여 율 1/1

주관기관 서강대학교 산학협력단

연구기간 2011.09.30 ~ 2012.09.29

특허청구의 범위

청구항 1

탄소 전구체 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전(water-in-oil emulsion)을 형성하는 것;
및

상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 입자를 수득하는 것

을 포함하는,

구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 탄소 전구체 수용액은, 플로로글루시놀-포름알데히드, 페놀-포름알데히드, 레조르시놀-포름알데히드, 페놀, 푸르푸릴 알코올, C₁₋₂₀의 지방족 탄화수소계 알데히드류, C₁₋₂₀의 방향족 탄화수소계 알데히드류, 수크로오스, 글루코오스, 자일로오스, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 단량체를 축합 중합 반응시켜 제조하는 탄소 전구체를 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 탄소 전구체 수용액은, 디비닐벤젠, 아크릴로니트릴, 염화비닐, 비닐아세테이트, 스티렌, 메타크릴레이트, 메틸메타크릴레이트, 에틸렌글리콜 디메타크릴레이트, 우레아, 멜라민, CH₂=CRR'(여기에서, R 및 R'은 각각 독립적으로 C₁₋₂₀의 알킬기 또는 아릴기임), 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 단량체를 부가 중합 반응시켜 제조하는 탄소 전구체를 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 탄소 전구체 수용액은 탄소나노튜브의 수분산 용액을 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 유기 용매는 지방족 탄화수소계 유기 용매, 또는 방향족 탄화수소계 유기 용매를 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 유중수형 에멀전을 형성하기 위하여 상기 탄소 전구체 수용액 및 상기 유기 용매에 계면활성제를 더 첨가하는 것을 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 7

제 1 항에 있어서,

상기 교반은 40℃ 내지 100℃에서 수행되는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 8

제 1 항에 있어서,

상기 교반의 속도를 조절함으로써 상기 구형의 탄소 입자의 크기를 조절하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 9

제 1 항에 있어서,

상기 유중수형 에멀전을 열처리하기 전에 상기 유기 용매를 제거하기 위하여 수세하고 건조하는 것을 추가 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 10

제 1 항에 있어서,

상기 열처리는 1 차 열처리, 및 상기 1 차 열처리 보다 높은 온도에서 수행되는 2 차 열처리를 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 11

제 1 항에 있어서,

상기 탄소 전구체 수용액에 탄소나노튜브 형태의 탄소 전구체가 포함되어 있는 경우, 상기 열처리는 400℃ 내지 1200℃에서 1 회 수행되는 것을 포함하는 것인, 구형의 탄소 입자의 제조 방법.

청구항 12

제 1 항 내지 제 11 항 중 어느 한 항에 따라 제조되는, 구형의 탄소 입자.

청구항 13

제 12 항에 있어서,

상기 탄소 입자의 크기는 100 nm 내지 200 μm 인, 구형의 탄소 입자.

청구항 14

탄소 전구체 수용액 및 나노입자의 분산 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전(water-in-oil emulsion)을 형성하는 것; 및

상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 복합체 입자를 수득하는 것을 포함하는,
구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법.

청구항 15

제 14 항에 있어서,
상기 나노입자는 금속 산화물의 나노입자, 또는 실리콘의 나노입자를 포함하는 것인, 구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법.

청구항 16

제 14 항에 있어서,
상기 나노입자의 분산 수용액의 농도를 조절함으로써 상기 구형의 탄소 복합체 입자의 화학 조성비를 조절하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법.

청구항 17

제 14 항 내지 제 16 항 중 어느 한 항에 따라 제조되는, 구형의 탄소 복합체 입자.

청구항 18

제 17 항에 있어서,
상기 탄소 복합체 입자의 크기는 100 nm 내지 200 μ m인, 구형의 탄소 복합체 입자.

청구항 19

제 17 항에 있어서,
상기 탄소 복합체 입자는, 탄소-금속 산화물 복합체 입자, 또는 탄소-실리콘 복합체 입자를 포함하는 것인, 구형의 탄소 복합체 입자.

명세서

기술 분야

[0001] 본원은, 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자, 및 유중수형 에멀전(water-in-oil emulsion)을 이용하여 상기 구형의 탄소 입자 및 상기 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하는 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 구형의 탄소 입자 또는 구형의 탄소 복합체 입자를 포함하는 다공성 구조체는 촉매, 분리 시스템, 저유전 물질, 수소 저장 물질, 광결정, 전극 등을 포함하여 다양한 산업 분야에서 널리 사용될 수 있다. 예를 들어, 상기 다공성 구조체에 포함되는 구형의 탄소 복합체 입자가 탄소와 함께 반도체성 산화금속을 함유하는 경우, 상기 구조체는 광촉매 특성 및 광전기 화학 변환 특성을 지니게 되며, 이에 따라 상기 구조체는 공기 및 수질 오염의 자기 정화에 응용될 수도 있고, 수소연료전지에 적용되어 물 분해를 통해 수소의 생산을 돕는 등, 다양한 분야에서 폭넓은 응용 가능성을 가진다. 또한, 상기 구형의 탄소 입자 또는 구형의 탄소 복합체 입자를 포함하는

다공성 구조체는, 특유의 표면 특성, 이온 전도성, 및 내부식성을 보유하며, 낮은 비용으로 다양한 종류 및 형태의 구조체를 제조할 수 있다는 이점 또한 보유한다.

[0003] 이와 같은 구형의 탄소 입자 또는 구형의 탄소 복합체 입자를 포함하는 다공성 탄소 구조체를 제조하기 위해서, 종래에는 주형(template)의 사용이 제안되어 왔다. 예를 들어, 상기 주형으로는 구형의 실리카 또는 라텍스 폴리머 나노입자의 정렬된 응집체에 기초한 콜로이달 결정성 어레이가 사용될 수 있으며, 이와 관련하여 한국등록특허 제10-0574030호 "균일한 직경을 가진 구형 세공이 3차원적으로 규칙적으로 배열된 다공성 탄소 구조체에 의해 지지된 연료전지용 전극 촉매 및 그의 제조 방법" 등의 발명이 있었다. 또한, 최근에는 제올라이트, 메조 다공성 물질 및 콜로이달 크리스탈을 이용한 주형 복제에 의하여 규칙적으로 정렬된 다공성을 갖는 탄소 구조체를 합성하는 시도가 있었다. 그러나, 이와 같은 종래의 방법들을 이용할 경우 별도의 주형을 사용한다는 번거로움이 있으며, 다공성 구조체 내부의 기공이 배열을 제어하기 어렵다는 문제점이 있다.

[0004] 이와 관련하여, 다공성의 탄소 구조체는 그 기공분포, 연결성, 표면적, 표면특성 등의 구조에 따라서 그 효율에 큰 차이를 보이며, 표면적과 기공 부피는 상기 탄소 구조체가 사용될 목적을 고려하여 이에 적합하게 제조될 필요가 있다. 예를 들어, 연료전지의 전극에 사용되는 경우, 탄소 구조체의 표면적과 기공 부피가 큰 것을 담체로 사용하면 담지되는 금속 촉매입자의 크기는 작아지고 탄소 담체에 보다 균일하게 분포하여 활성면적이 증가하고, 이에 따라 연료 및 반응 생성물의 확산이 원활하게 일어나 활성이 향상될 수 있다. 반면, 탄소 구조체의 세공의 크기가 극단적으로 작은 경우에는 비표면적이 매우 높아져서 촉매물질의 담지량이 증가하지만, 반응가스의 전달 및 확산이 어려워지고, 미세 기공 내부로 고분자 전해질의 침입할 수 없기 때문에 촉매의 이용효율이 저하되어 연료전지 특성을 향상시키지 못하는 경향이 있다.

[0005] 한편, 일반적으로 마이크로미터 크기의 입자의 제조법은 고분자 입자의 경우 다양한 합성 방법들이 잘 알려져 있는데, 예를 들어, 폴리스타이렌(PS)이나 폴리메틸메타크릴레이트(PMMA) 입자는 분산 중합(dispersion polymerization) 방법을 이용하여 수 마이크로미터 크기까지 제조할 수 있다. 그러나, 미세한 크기의 구형 탄소 입자 및 이들이 포함된 다공성 탄소 구조체를 주형 없이 용이하고 효율적으로 제조하는 것에 대해서는 연구가 미비한 실정이다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명자들은, 유중수형 에멀전을 이용하는 경우 별도의 주형을 이용하지 않아도 구형의 탄소 입자 또는 구형의 탄소 복합체 입자를 효율적으로 제조할 수 있음을 발견하여 본원을 완성하였다.

[0007] 이에, 본원은, 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자, 및 유중수형 에멀전을 이용하여 상기 구형의 탄소 입자 및 상기 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하는 방법을 제공한다.

[0008] 그러나, 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 이상에서 언급한 과제에 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 과제들은 아래의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0009] 본원의 제 1 측면은, 탄소 전구체 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전(water-in-oil emulsion)을 형성하는 것; 및 상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 입자를 수득하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 제공한다.

[0010] 본원의 제 2 측면은, 상기 본원의 제 1 측면의 방법에 따라 제조되는, 구형의 탄소 입자를 제공한다.

[0011] 본원의 제 3 측면은, 탄소 전구체 수용액 및 나노입자의 분산 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전을 형성하는 것; 및 상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 복합체 입자를 수득하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법을 제공한다.

[0012] 본원의 제 4 측면은, 상기 본원의 제 3 측면의 방법에 따라 제조되는, 구형의 탄소 복합체 입자를 제공한다.

발명의 효과

- [0013] 본원의 방법에 따라 유중수형 에멀전을 이용하여 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하는 경우, 별도의 주형(template)을 이용하지 않아도 상기 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자를 효율적으로 제조할 수 있다는 이점이 있다. 본원의 방법에 따라 구형의 입자 제조를 위한 별도의 주형을 이용하지 않음으로써, 제조 공정을 단순화할 수 있으며, 이에 따라 시간 및 비용을 절감할 수 있다는 이점이 있다. 또한, 별도의 주형을 이용하는 종래 기술의 경우에는 주형이 완벽하게 제거되지 않는 경우 불순물로 작용할 수 있다는 문제점이 있었으나, 본원에 따르면 이와 같은 문제점이 발생하지 않는다.
- [0014] 또한, 본원에서 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하기 위하여 이용하는 에멀전은 유성 용매에 수성의 물질이 분산된 유중수형 에멀전으로서, 나노입자체를 수분산시켜 탄소 전구체 수용액을 형성하는 것은 비교적 용이하지만 나노입자체를 유기분산시켜 탄소 전구체 용액을 형성하는 것은 어렵다는 점에서, 탄소 전구체 수용액을 이용하여 유중수형 에멀전을 형성한 뒤 이로부터 구형의 입자를 제조하는 본원의 방법은 유리한 효과를 가진다.
- [0015] 또한, 본원에 따라 제조된 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자는 별도의 지지체 없이도 구형의 형태를 유지할 수 있으며, 특히 구형의 탄소 복합체 입자의 경우 제조 과정에서 나노입자의 분산 수용액의 농도를 조절함으로써 용이하게 화학 조성을 조절하는 것이 가능하다는 이점이 있다.
- [0016] 또한, 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하는 경우에는 별도의 가열 공정 없이도 저절로 가교가 형성되어 일부 가열 공정의 생략이 가능해지므로 공정의 단순화를 도모할 수 있다는 이점이 있다.
- [0017] 또한, 본원의 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자는 제조의 마지막 단계에서 열처리를 수행함으로써 상기 구형의 입자들 간에 형성되어 있는 기공을 제어할 수 있다. 예를 들어, 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용한 경우, 제조된 구형의 탄소 입자는 탄소나노튜브로 이루어진 실타래와 같은 형태를 가지게 되는데, 이때 열처리를 통하여 상기 탄소나노튜브 사이의 기공을 용이하게 제어할 수 있다. 이에 따라, 상기 구형의 탄소 입자또는 구형의 탄소 복합체 입자를 포함하는 다공성 구조체의 기공을 용이하게 조절할 수 있어, 다양한 산업 분야에 대한 응용 가능성이 높다는 이점이 있다.
- [0018] 예를 들어, 본원에 따라 제조된 구형의 탄소 입자는 EDLC(전기 이중층 콘덴서; Electric Double Layer Capacitor) 타입의 캐패시터(capacitor) 전극으로 이용할 수 있고, 리튬 이온 배터리의 음극활물질로서 이용할 수도 있으나, 상기 구형의 탄소 입자의 용도가 이에 제한되는 것은 아니며, 다양한 산업 분야에서 널리 응용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0019] 도 1은 본원의 일 구현예에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 나타낸 순서도이다.
- 도 2는 본원의 일 구현예에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 순차적으로 나타낸 모식도이다.
- 도 3은 본원의 일 실시예에 따라 탄소 전구체 수용액으로서 플로로글루시놀-포름알데히드 레졸을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진이다.
- 도 4는 본원의 일 실시예에 따라 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진이다.
- 도 5는 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자의 전자 현미경 사진이다.
- 도 6은 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-틴 옥사이드(SnO_2) 복합체 입자의 전자 현미경 사진이다.
- 도 7은 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소 입자에 대한 순환전류전압도(CV; cyclic voltammetry)이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0020] 아래에서는 첨부한 도면을 참조하여 본원이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본원의 실시예를 상세히 설명한다. 그러나 본원은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서

설명하는 실시예에 한정되지 않는다. 그리고 도면에서 본원을 명확하게 설명하기 위해서 설명과 관계없는 부분은 생략하였으며, 명세서 전체를 통하여 유사한 부분에 대해서는 유사한 도면 부호를 붙였다.

- [0021] 본원 명세서 전체에서, 어떤 부분이 다른 부분과 "연결"되어 있다고 할 때, 이는 "직접적으로 연결"되어 있는 경우뿐 아니라, 그 중간에 다른 소자를 사이에 두고 "전기적으로 연결"되어 있는 경우도 포함한다.
- [0022] 본원 명세서 전체에서, 어떤 부재가 다른 부재 "상에" 위치하고 있다고 할 때, 이는 어떤 부재가 다른 부재에 접해 있는 경우뿐 아니라 두 부재 사이에 또 다른 부재가 존재하는 경우도 포함한다.
- [0023] 본원 명세서 전체에서, 어떤 부분이 어떤 구성요소를 "포함"한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성 요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미한다. 본원 명세서 전체에서 사용되는 정도의 용어 "약", "실질적으로" 등은 언급된 의미에 고유한 제조 및 물질 허용오차가 제시 될 때 그 수치에서 또는 그 수치에 근접한 의미로 사용되고, 본원의 이해를 돕기 위해 정확하거나 절대적인 수치가 언급된 개시 내용을 비양심적인 침해자가 부당하게 이용하는 것을 방지하기 위해 사용된다. 본원 명세서 전체에서 사용되는 정도의 용어 "~(하는) 단계" 또는 "~의 단계"는 "~를 위한 단계"를 의미하지 않는다.
- [0024] 본원 명세서 전체에서, 마쿠시 형식의 표현에 포함된 "이들의 조합"의 용어는 마쿠시 형식의 표현에 기재된 구성 요소들로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 혼합 또는 조합을 의미하는 것으로서, 상기 구성 요소들로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상을 포함하는 것을 의미한다.
- [0025] 본원 명세서 전체에 있어서, "알킬" 또는 "알킬기"는, 각각, 선형 또는 분지형의, 포화 또는 불포화의, 탄소수 1 내지 10 의 알킬기일 수 있으며, 예를 들어, 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실, 헵실, 옥틸, 노닐, 데실, 또는 이들의 이성질체를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0026] 본원 명세서 전체에 있어서, 단독으로 또는 또 다른 기의 일부분으로서 용어 "아릴" 또는 "아릴기"는 모노사이클릭 또는 바이사이클릭 방향족 고리, 예를 들어, 페닐, 치환된 페닐뿐만 아니라, 접합된 기, 예를 들어 나프틸, 페난트레닐, 인데닐, 테트라히드로나프틸 및 인다닐 등을 포함한다. 예를 들어, 상기 "아릴" 또는 "아릴기"는 6개 이상의 원자를 갖는 1개 이상의 고리를 함유하며, 22개 이하의 원자를 함유하는 5개 이하의 고리가 존재할 수 있고, 인접 탄소 원자 또는 적합한 헤테로원자 사이에 이중 결합이 교대로(공명) 존재할 수 있다. 상기 "아릴" 또는 "아릴기"는 임의로 할로젠, 예컨대 F, Br, Cl 또는 I, 알킬, 예컨대 메틸, 에틸, 프로필, 알콕시, 예컨대 메톡시 또는 에톡시, 히드록시, 카르복시, 카르바모일, 알킬옥시카르보닐, 니트로, 알케닐옥시, 트리플루오로메틸, 아미노, 사이클로알킬, 아릴, 헤테로아릴, 시아노, 알킬 S(O)_m (m=0, 1, 2) 또는 티올을 비롯한, 그러나 이에 한정되지 않는 1개 이상의 기로 치환될 수 있다. 예를 들어, 상기 "아릴" 또는 "아릴기"는 페닐, 상기한 바와 같이 치환된 페닐, 페닐, 나프틸, 또는 상기한 바와 같이 치환된 나프틸일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0027] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본원의 구현예 및 실시예를 상세히 설명한다.
- [0028] 본원의 제 1 측면은, 탄소 전구체 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전(water-in-oil emulsion)을 형성하는 것; 및 상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 입자를 수득하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 제공한다.
- [0029] 본원의 제 1 측면은 별도의 주형을 사용하지 않고 유중수형 에멀전을 형성하여 이로부터 구형의 탄소 입자를 제조하는 방법에 관한 것으로서, 상기 유중수형 에멀전은 오일상(oil phase)이 연속상이고 수상(water phase)이 분산상인 경우를 의미하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 연속상으로서의 오일 상을 형성하기 위하여 상기 유기 용매를 사용하고, 상기 분산상으로서의 수상을 형성하기 위하여 상기 탄소 전구체 수용액을 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 유중수형 에멀전은 오일상 내부에 수상이 액적 형태로 포함되어 있는 것으로서, 서로 다른 섞이지 않는 유체에 기계적인 힘을 가함으로써 구형의 미세한 방울들이 분산상으로서 연속상에 분산되도록 한 것을 의미할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0030] 예를 들어, 상기 탄소 전구체 수용액에 포함되는 탄소 전구체는, 산소를 포함하지 않는 환원 분위기에서 열처리 또는 소성에 의한 탄화 과정을 통하여 탄소로 환원될 수 있는 물질을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는

것은 아니다.

- [0031] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 전구체 수용액은, 플로로글루시놀-포름알데히드, 페놀-포름알데히드, 레조르시놀-포름알데히드, 페놀, 푸르푸릴 알코올, C₁₋₂₀의 지방족 탄화수소계 알데히드류, C₁₋₂₀의 방향족 탄화수소계 알데히드류, 수크로오스, 글루코오스, 자일로오스, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 단량체를 축합 중합 반응시켜 제조하는 탄소 전구체를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0032] 예를 들어, 상기 축합 중합 반응을 수행하기 위하여 산성 촉매 또는 염기성 촉매를 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 축합 중합 반응을 이용하여 페놀-포름알데히드 레졸(resol)을 제조하기 위하여, 페놀을 약 60℃ 내지 약 80℃의 온도에서 약 20 분 내지 약 30 분 동안 오븐 가열하고, 마이크로튜브에 상기 페놀을 넣고 약 20%의 NaOH 수용액에 한 방울씩 적하하고, 이후 포르말린 수용액을 주입하여 약 60℃ 내지 약 80℃의 온도에서 약 50 분 내지 약 70 분 동안 반응시킨 후, 약 0.6 M 염산 수용액으로 적정함으로써 pH 7.0 이 되도록 중화하고, 진공 상태에서 약 24 시간 건조하고, 최종적으로 에탄올에 약 40 내지 약 50% 질량 분율로 녹임으로써 상기 페놀-포름알데히드 레졸을 완성하는 방법을 이용할 수 있으나, 이는 예시적 구현예에 불과한 것으로서 본원이 이에 제한되는 것은 아니다. 이와 같이 축합 중합된 페놀-포름알데히드 레졸은 상기 구형의 탄소 입자를 제조하기 위한 상기 탄소 전구체로서 사용될 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0033] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 전구체 수용액은, 디비닐벤젠, 아크릴로니트릴, 염화비닐, 비닐아세테이트, 스티렌, 메타크릴레이트, 메틸메타크릴레이트, 에틸렌글리콜 디메타크릴레이트, 우레아, 멜라민, CH₂=CRR' (여기에서, R 및 R'은 각각 독립적으로 C₁₋₂₀의 알킬기 또는 아릴기임), 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 단량체를 부가 중합 반응시켜 제조하는 탄소 전구체를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0034] 예를 들어, 상기 부가 중합 반응을 수행하기 위하여 중합 개시제를 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 중합 개시제로서는 상기 부가 중합 반응을 수행하기 위해 통상적으로 사용되는 중합 개시제를 제한 없이 사용할 수 있으며, 예를 들어, 아조비스이소부티로니트릴(AIBN), t-부틸퍼아세테이트, 벤조일퍼옥시드(BPO), 아세틸퍼옥시드, 라우릴퍼옥시드, 및 이들의 조합들로 이루어지는 군으로부터 선택되는 중합 개시제를 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0035] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 전구체 수용액은 탄소나노튜브의 수분산 용액을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용할 경우 용이하게 가교가 형성됨으로써 열처리 단계를 일부 생략할 수 있게 되어 공정을 간소화할 수 있고 이에 따라 비용 및 시간을 절감하는 효과를 기대할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0036] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 유기 용매는 지방족 탄화수소계 유기 용매, 또는 방향족 탄화수소계 유기 용매를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 지방족 탄화수소계 유기 용매 또는 방향족 탄화수소계 유기 용매는, C₆₋₂₀의 탄화수소계 유기 용매를 특별히 제한 없이 당업자가 적의 선택하여 사용할 수 있는 것이나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 지방족 탄화수소계 유기 용매는 C₆₋₂₀, 또는 C₁₀₋₂₀의 선형 또는 분지형 지방족 탄화수소를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 예를 들어, 상기 방향족 탄화수소계 유기 용매는 C₆₋₂₀, 또는 C₁₀₋₂₀의 방향족 탄화수소를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 방향족 탄화수소계 유기 용매는 톨루엔을 포함할 수 있으며, 상기 지방족 탄화수소계 유기 용매는 헥사데칸을 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0037] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 유중수형 에멀전을 형성하기 위하여 상기 탄소 전구체 수용액 및 상기 유기 용매에 계면활성제를 더 첨가하는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 계면활성제는 저절로 섞이지 않는 물질의 혼합체인 상기 유중수형 에멀전을 보다 안정화하기 위해 첨가되는 것으로서, 예를 들어, 플로닉 F108(Pluronic F108), SPAN 80(Sorbitan monooleate) 또는 하이퍼머 2296(Hypermer 2296) 등을 상기 계면활성제로서 사용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0038] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 교반은 약 40℃ 내지 약 100℃에서 수행되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 교반은 약 40℃ 내지 약 60℃, 약 40℃ 내지 약 80℃, 약 40℃ 내지 약 100℃, 약 60℃ 내지 약 80℃, 약 60℃ 내지 약 100℃, 또는 약 80℃ 내지 약 100℃에서 수행되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 교반을 상온 보다 높은 온도에서 수행함으로써 가교 형성에 도움을

줄 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

- [0039] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 본원의 제 1 측면에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법은 상기 교반의 속도를 조절함으로써 상기 구형의 탄소 입자의 크기를 조절하는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 교반의 속도를 높임으로써 최종적으로 수득하는 상기 구형의 탄소 입자의 크기를 보다 작게 조절할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0040] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 본원의 제 1 측면에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법은 상기 유중수형 에멀전을 열처리하기 전에 상기 유기 용매를 제거하기 위하여 수세하고 건조하는 것을 추가 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 유기 용매를 제거하기 위하여, 헥세인 용액을 이용하여 수차례 반복 수세하는 공정을 수행할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 상기 건조 공정은 유기 용매를 제거하기 위한 것일 뿐만 아니라, 상기 유중수형 에멀전에서 상기 구형의 탄소 입자가 응집하여 형성되는데 영향을 미치는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0041] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 열처리는 1 차 열처리, 및 상기 1 차 열처리 보다 높은 온도에서 수행되는 2 차 열처리를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 가교를 위한 1 차 열처리 공정은 약 80℃ 내지 약 100℃, 약 80℃ 내지 약 130℃, 약 80℃ 내지 약 160℃, 약 80℃ 내지 약 200℃, 약 100℃ 내지 약 130℃, 약 100℃ 내지 약 160℃, 약 100℃ 내지 약 200℃, 약 130℃ 내지 약 160℃, 약 130℃ 내지 약 200℃, 또는 약 160℃ 내지 약 200℃에서 수행되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 1 차 열처리 공정은 가교 형성을 위한 것으로서 상기 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하는 경우에는 생략하여도 무방한 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0042] 예를 들어, 상기 2 차 열처리는 상기 탄소 전구체를 탄화시켜 최종적으로 구형의 탄소 입자를 제조하기 위해 수행되는 것으로서, 상기 1 차 열처리에 비해 높은 온도에서 수행되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 2 차 열처리는 산소를 포함하지 않는 환원분위기, 즉, He, Ne 등의 비활성 기체, 수소, 질소, 또는 SF₆ 기체를 포함하는 분위기에서 수행되는 것일 수 있으며, 상기 환원분위기에서의 열처리 또는 소성을 통하여 상기 탄소 전구체를 탄화시키기 위한 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 2 차 열처리 시간 및 온도는 특별히 제한되지 않으며, 상기 탄소 전구체가 모두 탄화되기에 충분한 시간 및 온도 범위에서 적절하게 선택할 수 있다. 예를 들어, 상기 2 차 열처리 시간은 약 1 시간 이상, 예를 들어 약 1 시간 내지 약 3 시간, 약 1 시간 내지 약 6 시간, 약 1 시간 내지 약 10 시간, 약 3 시간 내지 약 6 시간, 약 3 시간 내지 약 10 시간, 또는 약 6 시간 내지 약 10 시간일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 예를 들어, 상기 2 차 열처리 온도는 약 400℃ 내지 약 1200℃, 보다 상세하게는 약 400℃ 내지 약 600℃, 약 400℃ 내지 약 800℃, 약 400℃ 내지 약 1000℃, 약 400℃ 내지 약 1200℃, 약 600℃ 내지 약 800℃, 약 600℃ 내지 약 1000℃, 약 600℃ 내지 약 1200℃, 약 800℃ 내지 약 1000℃, 약 800℃ 내지 약 1200℃, 또는 약 1000℃ 내지 약 1200℃일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0043] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 전구체 수용액에 탄소나노튜브 형태의 탄소 전구체가 포함되어 있는 경우, 상기 열처리는 약 400℃ 내지 약 1200℃에서 1 회 수행되는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 탄소 전구체 수용액에 탄소나노튜브 형태의 탄소 전구체가 포함되어 있는 경우, 상기 열처리는 약 400℃ 내지 약 1200℃, 보다 상세하게는 약 400℃ 내지 약 600℃, 약 400℃ 내지 약 800℃, 약 400℃ 내지 약 1000℃, 약 400℃ 내지 약 1200℃, 약 600℃ 내지 약 800℃, 약 600℃ 내지 약 1000℃, 약 600℃ 내지 약 1200℃, 약 800℃ 내지 약 1000℃, 약 800℃ 내지 약 1200℃, 또는 약 1000℃ 내지 약 1200℃에서 1 회 수행되는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 상기 열처리가 1 회 수행된다는 표현은, 상기 탄소 전구체 수용액에 탄소나노튜브 형태의 탄소 전구체가 포함되어 있는 경우에는 가교를 위한 별도의 열처리 공정을 생략할 수 있음을 의미하는 것으로서, 열처리의 수행 횟수가 반드시 1 회에 제한되어야 하는 것은 아니며, 필요에 따라 상기 열처리는 다양한 온도에서 반복적으로 수행될 수 있다.
- [0044] 이와 관련하여, 본원의 도 1은 본원의 일 구현예에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 나타낸 순서도이다. 예를 들어, 본원의 도 1의 순서도에 나타난 바와 같이, 탄소 전구체 수용액을 유기 용매에 첨가하여 혼합 용액을 형성하고, 상기 혼합 용액을 교반하여 유중수형 에멀전을 형성한 뒤, 상기 유중수형 에멀전을 열처리함으로써 구형의 탄소 입자를 제조할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0045] 한편, 도 2는 본원의 일 구현예에 따른 구형의 탄소 입자의 제조 방법을 순차적으로 나타낸 모식도이다. 도 2를 참조하면, 먼저 탄소 전구체 용액을 유기 용매에 첨가하고 이를 교반함으로써 유중수형 에멀전을 형성하며, 이후 상기 유중수형 에멀전을 1 차 열처리하는 공정을 수행할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들

어, 상기 교반 및 상기 1 차 열처리는 비교적 낮은 온도, 예를 들어 약 40 °C 내지 약 100 °C 정도의 온도에서 수행되는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 상기 탄소 전구체 용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하는 경우에는 비교적 낮은 온도에서의 열처리 공정, 즉 상기 1 차 열처리 공정을 생략하더라도 가교가 저절로 형성됨으로써 공정을 간소화할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 이후, 수세 및 건조 과정을 통하여 상기 유기 용매를 제거하고 상기 구형의 탄소 입자만 남도록 하고, 이어 2 차 열처리 공정을 수행함으로써 상기 구형의 탄소 입자의 탄화를 유도하여 최종적으로 목적인 구형의 탄소 입자를 수득할 수 있으나, 본원이 이에 제한되는 것은 아니다.

[0046] 본원의 제 2 측면은, 상기 본원의 제 1 측면의 방법에 따라 제조되는, 구형의 탄소 입자를 제공한다.

[0047] 본원의 제 2 측면은 본원의 제 1 측면의 방법에 따라 제조되는 구형의 탄소 입자에 관한 것으로서, 본원의 제 1 측면과 중복되는 부분들에 대해서는 상세한 설명을 생략하였으나, 본원의 제 1 측면에 대해 설명한 내용은 본원의 제 2 측면에서 그 설명이 생략되었더라도 동일하게 적용될 수 있다.

[0048] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 입자의 크기는 약 100 nm 내지 약 200 μm 일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 탄소 입자의 크기는 약 100 nm 내지 약 500 nm, 약 100 nm 내지 약 1 μm , 약 100 nm 내지 약 50 μm , 약 100 nm 내지 약 100 μm , 약 100 nm 내지 약 150 μm , 약 100 nm 내지 약 200 μm , 약 500 nm 내지 약 1 μm , 약 500 nm 내지 약 50 μm , 약 500 nm 내지 약 100 μm , 약 500 nm 내지 약 150 μm , 약 500 nm 내지 약 200 μm , 약 1 μm 내지 약 50 μm , 약 1 μm 내지 약 100 μm , 약 1 μm 내지 약 150 μm , 약 1 μm 내지 약 200 μm , 약 50 μm 내지 약 100 μm , 약 50 μm 내지 약 150 μm , 약 50 μm 내지 약 200 μm , 약 100 μm 내지 약 150 μm , 약 100 μm 내지 약 200 μm , 또는 약 150 μm 내지 약 200 μm 일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0049] 예를 들어, 상기 탄소 구조체는 다공성의 탄소 구조체로서, 상기 다공성의 탄소 구조체에 포함되는 구형의 탄소 입자 크기 및 분포를 조절하고, 기공의 크기 및 분포를 조절함으로써 다양한 산업 분야에 이를 적용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0050] 본원의 제 2 측면에 따른 구형의 탄소 입자와 관련하여, 도 3은 본원의 일 실시예에 따라 탄소 전구체 수용액으로서 플로로글루시놀-포름알데히드 래졸을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진이고, 도 4는 본원의 일 실시예에 따라 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진을 나타낸 것이다.

[0051] 본원의 제 3 측면은, 탄소 전구체 수용액 및 나노입자의 분산 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전을 형성하는 것; 및 상기 유중수형 에멀전을 열처리하여 구형의 탄소 복합체 입자를 수득하는 것을 포함하는, 구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법을 제공한다.

[0052] 본원의 제 3 측면은, 본원의 제 1 측면과 비교할 때 유중수형 에멀전을 형성하는 과정에서 나노입자의 분산 수용액을 추가적으로 사용한다는 점, 및 최종적으로 수득하는 물질이 구형의 탄소 입자가 아닌 구형의 탄소 복합체 입자라는 점에서 차이가 있으나, 그 외의 특징들은 본원의 제 1 측면의 제조 방법과 본원의 제 3 측면의 제조 방법에 공통적으로 적용될 수 있다. 따라서, 본원의 제 1 측면과 중복되는 부분들에 대해서는 상세한 설명을 생략하였으나, 본원의 제 1 측면에 대해 설명한 내용은 본원의 제 3 측면에서 그 설명이 생략되었더라도 동일하게 적용될 수 있다.

[0053] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 나노입자는 금속 산화물의 나노입자, 또는 실리콘의 나노입자를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 나노입자로서 텅 옥사이드와 같은 금속 산화물의 나노입자를 사용하는 경우, 최종적으로 구형의 탄소-금속 산화물 복합체 입자를 수득할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 나노입자로서 실리콘의 나노입자를 사용하는 경우, 최종적으로 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자를 수득할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

[0054] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 본원의 제 3 측면에 따른 구형의 탄소 복합체 입자의 제조 방법은 상기 나노입자의 분산 수용액의 농도를 조절함으로써 상기 구형의 탄소 복합체 입자의 화학 조성비를 조절하는 것을 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

- [0055] 본원의 제 4 측면은, 상기 본원의 제 3 측면의 방법에 따라 제조되는, 구형의 탄소 복합체 입자를 제공한다.
- [0056] 본원의 제 4 측면은 본원의 제 3 측면의 방법에 따라 제조되는 구형의 탄소 입자에 관한 것으로서, 본원의 제 3 측면과 중복되는 부분들에 대해서는 상세한 설명을 생략하였으나, 본원의 제 3 측면에 대해 설명한 내용은 본원의 제 4 측면에서 그 설명이 생략되었다더라도 동일하게 적용될 수 있다.
- [0057] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 복합체 입자의 크기는 100 nm 내지 200 μm 일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다. 예를 들어, 상기 탄소 복합체 입자의 크기는 약 100 nm 내지 약 500 nm, 약 100 nm 내지 약 1 μm , 약 100 nm 내지 약 50 μm , 약 100 nm 내지 약 100 μm , 약 100 nm 내지 약 150 μm , 약 100 nm 내지 약 200 μm , 약 500 nm 내지 약 1 μm , 약 500 nm 내지 약 50 μm , 약 500 nm 내지 약 100 μm , 약 500 nm 내지 약 150 μm , 약 500 nm 내지 약 200 μm , 약 1 μm 내지 약 50 μm , 약 1 μm 내지 약 100 μm , 약 1 μm 내지 약 150 μm , 약 1 μm 내지 약 200 μm , 약 50 μm 내지 약 100 μm , 약 50 μm 내지 약 150 μm , 약 50 μm 내지 약 200 μm , 약 100 μm 내지 약 150 μm , 약 100 μm 내지 약 200 μm , 또는 약 150 μm 내지 약 200 μm 일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0058] 예를 들어, 상기 탄소 복합체 구조체는 다공성의 탄소 복합체 구조체로서, 상기 다공성의 탄소 복합체 구조체에 포함되는 구형의 탄소 복합체 입자 크기 및 분포를 조절하고, 기공의 크기 및 분포를 조절함으로써 다양한 산업 분야에 이를 적용할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0059] 본원의 일 구현예에 따르면, 상기 탄소 복합체 입자는, 탄소-금속 산화물 복합체 입자, 또는 탄소-실리콘 복합체 입자를 포함하는 것일 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0060] 본원의 제 4 측면에 따른 구형의 탄소 복합체 입자와 관련하여, 도 5는 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자의 전자 현미경 사진이며, 도 6은 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-틴 옥사이드(SnO_2) 복합체 입자의 전자 현미경 사진이다.
- [0061] 이하, 본원에 대하여 실시예를 이용하여 보다 더 구체적으로 설명하지만, 본원이 이에 제한되는 것은 아니다.
- [0062] **[실시예]**
- [0063] **1. 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자의 제조**
- [0064] 본 실시예에서 구형의 탄소 입자를 제조하기 위해 사용한 탄소 전구체 수용액은 2 종류로서, 하나는 플로로글루시놀(phloroglucinol)-포름알데히드 레졸이고, 다른 하나는 탄소나노튜브의 수분산 용액이었다.
- [0065] 상기 플로로글루시놀-포름알데히드 레졸을 형성하기 위하여, 플로로글루시놀 약 4 mmol을 에탄올:물=10:9 (질량비) 수용액에 첨가하였다. 또한, 메조 기공의 형성을 위한 계면활성제로서 약 0.04 mmol의 플루로닉(pluronic) F127을 첨가하였다. 또한, 촉매로서 수산화나트륨(NaOH) 약 125 mL를 첨가하였고, 이후 약 2 시간 동안 교반하였다. 이후, 포름알데히드 5.25 mL를 첨가하여, 상기 탄소 전구체 수용액으로서 사용된 플로로글루시놀-포름알데히드 레졸을 완성하였다.
- [0066] 상기 탄소나노튜브 수분산 용액은, 탄소나노튜브를 물에 10% 질량비로 분산함으로써 간단하게 제조되었다.
- [0067] 이와 같이 2 종류의 탄소 전구체 수용액을 제조한 뒤, 유중수형 에멀전을 형성하기 위하여 유기 용매로서 헥사데케인(hexadecane)에 하이퍼머(hypermeh)를 1% 질량비로 혼합한 용액을 제조하였다. 상기 헥사데케인 함유 용액에 20:1의 부피비로 미리 준비한 탄소 전구체 수용액을 주입하였다. 오일 성분에 해당하는 헥사데케인과 상기 탄소 전구체 수용액은 섞이지 않으며, 상기 탄소 전구체 수용액이 상기 헥사데케인 용액 내부에서 구형 구조를 형성하면서 유중수형 에멀전을 형성하게 된다. 이후, 상기 유중수형 에멀전을 교반함으로써, 상기 헥사데케인 용액 내부의 구형 탄소 전구체의 크기가 일정 수준 이하로 작아지도록 하였다. 이때, 교반 속도를 조절함으로써 구형 탄소 전구체의 크기를 제어할 수 있음을 확인하였다. 24 시간 동안 교반을 통하여 유중수형 에멀전 반응을 수행한 후, 상기 헥사데케인 용액 내부의 탄소 전구체는 약간의 가교가 형성되었고 구형의 구조를 나타내게 되었다. 상기 헥사데케인 용액과 구형의 탄소 전구체의 혼합물에서 상기 헥사데케인 용액을 제거하기 위하여, 헥산(hexane) 용액을 이용하여 수차례 수세하였다. 이후 수득된 구형의 탄소 전구체를 진공 오븐에 넣어

완전 건조시킨 뒤, 100℃ 이상의 오븐 내에서 12 시간 이상 두었다. 이후, 700℃에서 소결 공정을 수행하여 탄 화시킴으로써, 최종적으로 구형의 탄소 입자를 수득하였다.

[0068] 상기 구형의 탄소 입자의 제조 공정은 2 종류의 탄소 전구체 수용액 중 플로로글루시놀-포름알데히드 레졸을 이용한 경우에 관한 것이며, 다른 하나인 탄소나노튜브 수분산 용액을 탄소 전구체 수용액으로서 이용하는 경우에는 가교를 위한 별도의 열처리 공정을 생략하는 것이 가능함을 확인하였다.

[0069] 한편, 구형의 탄소 복합체 입자로서 탄소-틴 옥사이드 입자 및 탄소-실리콘 입자를 제조하기 위해서는, 탄소 전구체 수용액과 함께 나노입자의 분산 수용액을 유기 용매에 첨가하고 교반하여 유중수형 에멀전을 형성하게 되며, 상기 나노입자의 분산 수용액을 추가 사용하는 것 이외의 공정들은 상기 구형의 탄소 입자 제조 공정과 동일하게 수행되었다. 상기 나노입자의 분산 수용액으로서 틴 옥사이드 나노입자를 물에 15% 질량비, 및 30% 질량비로 분산시킨 용액을 사용한 경우 구형의 탄소-틴 옥사이드 입자가 제조되었고, 상기 나노입자의 분산 수용액으로서 실리콘 수분산 용액을 사용한 경우에는 구형의 탄소-실리콘 입자가 제조되었다.

[0070] 2. 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자의 형태 분석

[0071] 본 실시예에서 제조한 구형의 탄소 입자 및 구형의 탄소 복합체 입자의 형태를 분석하기 위하여, 전자 현미경 사진을 이용하였다.

[0072] 이와 관련하여, 본원의 도 3은 탄소 전구체 수용액으로서 플로로글루시놀-포름알데히드 레졸을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진이고, 본원의 도 4는 탄소 전구체 수용액으로서 탄소나노튜브의 수분산 용액을 이용하여 제조한 구형의 탄소 입자의 전자 현미경 사진이다.

[0073] 또한, 본원의 도 5는 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자의 전자 현미경 사진이며, 본원의 도 6은 구형의 탄소-틴 옥사이드(SnO_2) 복합체 입자의 전자 현미경 사진으로서, 구체적으로 나노입자의 분산 수용액으로서 틴 옥사이드 나노입자를 물에 15% 질량비로 분산시킨 용액을 사용하여 제조한 탄소-틴 옥사이드 복합체 입자의 전자 현미경 사진이다.

[0074] 상기 도 3 내지 도 6의 전자 현미경 사진들을 통하여, 본 실시예에 따라 제조된 탄소 입자 및 탄소 복합체 입자가 주형을 이용하지 않고 유중수형 에멀전만을 이용하여 제조되었음에도 불구하고, 구형으로 형성되었음을 확인할 수 있었다.

[0075] 3. 구형의 탄소 복합체 입자의 화학 조성비 분석

[0076] 본 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소 복합체 입자들의 화학 조성비를 분석하기 위하여 EDS(energy dispersive spectroscopy)를 이용하였다. 상기 도 5에 나타난 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자, 및 상기 도 6에 나타난 구형의 탄소-틴 옥사이드 복합체 입자 각각에 대하여 EDS를 이용한 화학 조성비 분석을 수행하였다.

[0077] 이와 관련하여, 하기 표 1은 본 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-실리콘 복합체 입자의 화학 조성비 분석 결과이고, 하기 표 2는 본 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소-틴 옥사이드 복합체 입자의 화학 조성비 분석 결과로서, "15% 틴 옥사이드 용액" 컬럼은 상기 복합체 입자를 제조하기 위하여 물에 15% 질량비로 분산된 틴 옥사이드 용액을 이용한 경우의 분석 결과이고, "30% 틴 옥사이드 용액" 컬럼은 상기 복합체 입자를 제조하기 위하여 물에 30% 질량비로 분산된 틴 옥사이드 용액을 이용한 경우의 분석 결과이다:

표 1

물질	질량 비율(%)
탄소 (C)	83.00
산소 (O)	41.60
실리콘 (Si)	2.41

표 2

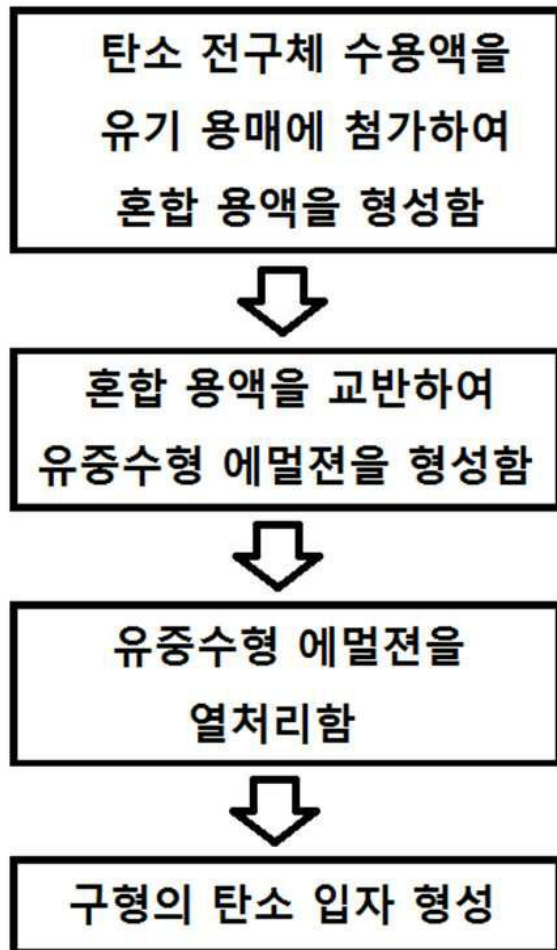
물질	질량 비율(%)	
	15% 틴 옥사이드 용액	30% 틴 옥사이드 용액

탄소 (C)	83.74	86.20
산소 (O)	15.37	12.72
주석 (sn)	0.89	1.08

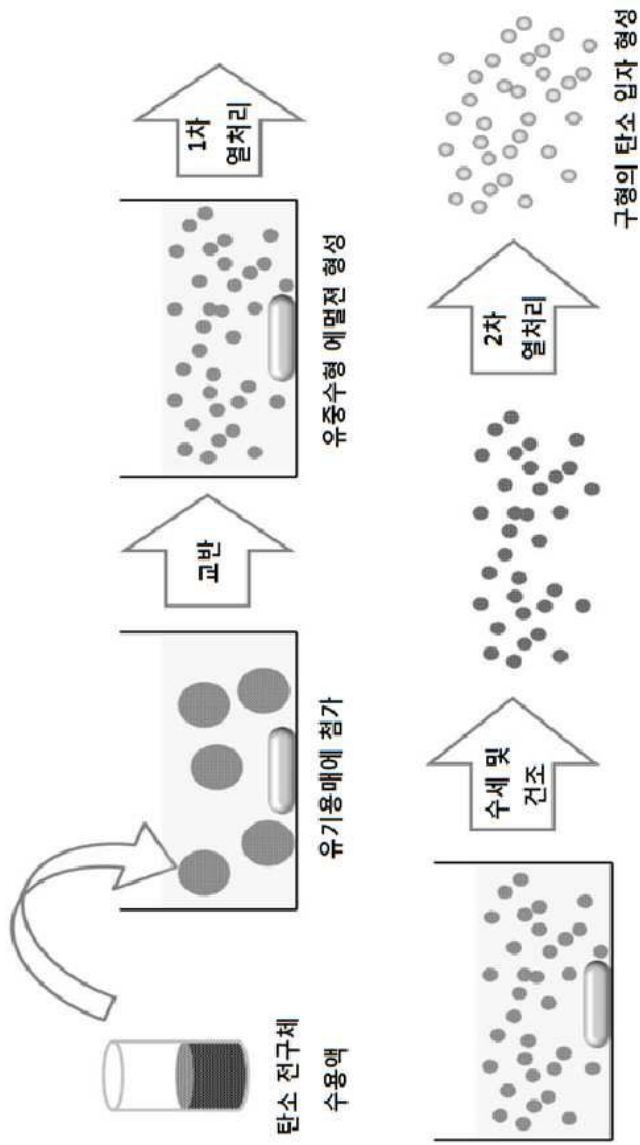
- [0080] 상기 표 1 및 표 2의 화학 조성비 분석 결과를 통하여, 본 실시예에 따라 제조하고자 한 탄소 복합체 입자가 잘 형성되었음을 확인할 수 있었다.
- [0081] 또한, 상기 표 2의 화학 조성비 분석 결과를 통하여, 구형의 탄소 복합체 입자를 제조하기 위하여 사용되는 나노입자의 분산 수용액의 농도를 조절함으로써 상기 구형의 탄소 복합체 입자의 화학 조성비를 조절할 수 있음을 확인할 수 있었다.
- [0082] **4. 축전 장치에 대한 활용 가능성 분석**
- [0083] 본원의 일 실시예에 따라 제조한 구형의 탄소 입자의 축전 장치에 대한 활용 가능성을 확인하기 위한 실험을 수행하였다. 구체적으로, 상기 구형의 탄소 입자를 전극으로서 사용하고, 황산 전해질을 이용하여 축전 용량(capacitance)을 측정하였다.
- [0084] 상기 실험을 수행한 결과, 스캔 속도(scan rate) 약 500 mv에서 비축전 용량(specific capacitance)은 약 82.52 F/g로 측정되었다. 또한, 상기 실험을 통하여 본원의 도 7에 나타낸 순환전류전압도(CV; cyclic voltammetry)를 얻을 수 있었다.
- [0085] 이로부터, 본원에 따라 제조된 구형의 탄소 입자를 EDLC(전기 이중층 콘덴서; Electric Double Layer Capacitor) 타입의 캐패시터(capacitor) 전극으로 이용할 수 있다는 활용 가능성을 확인할 수 있었다.
- [0086] 전술한 본원의 설명은 예시를 위한 것이며, 본원이 속하는 기술분야의 통상의 지식을 가진 자는 본원의 기술적 사상이나 필수적인 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 쉽게 변형이 가능하다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 이상에서 기술한 실시예들은 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적이 아닌 것으로 이해해야만 한다. 예를 들어, 단일형으로 설명되어 있는 각 구성요소는 분산되어 실시될 수도 있으며, 마찬가지로 분산된 것으로 설명되어 있는 구성요소들도 결합된 형태로 실시될 수도 있다.
- [0087] 본원의 범위는 상기 상세한 설명보다는 후술하는 특허청구범위에 의하여 나타내어지며, 특허청구범위의 의미 및 범위, 그리고 그 균등 개념으로부터 도출되는 모든 변경 또는 변형된 형태가 본원의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 한다.

도면

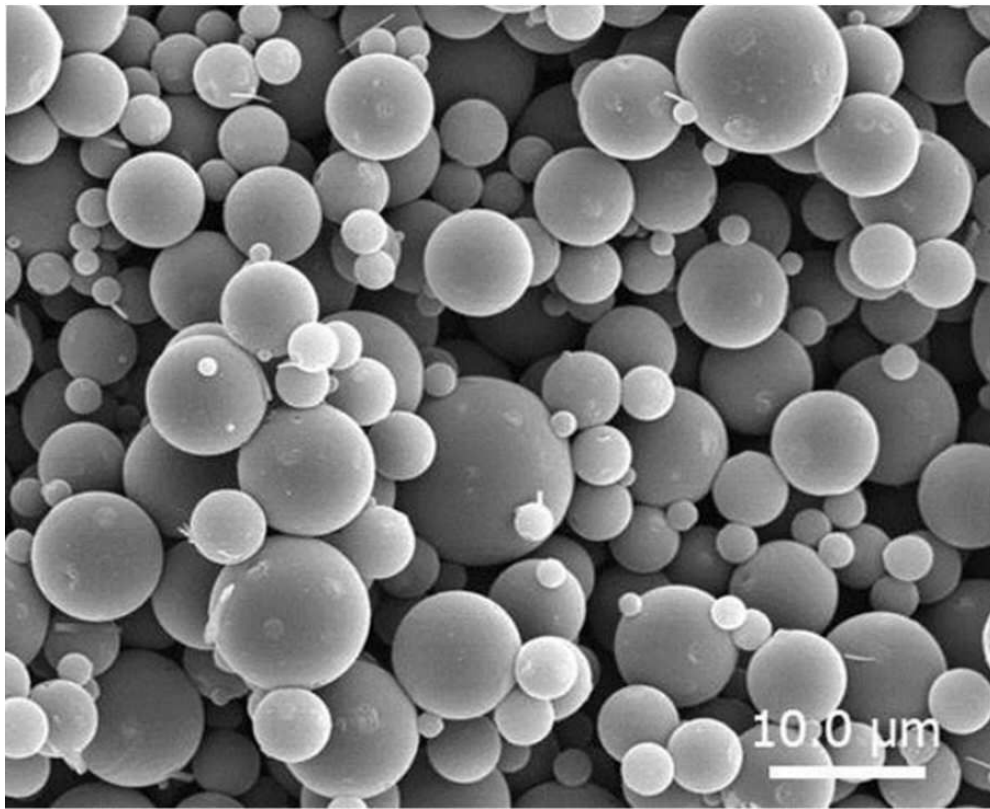
도면1



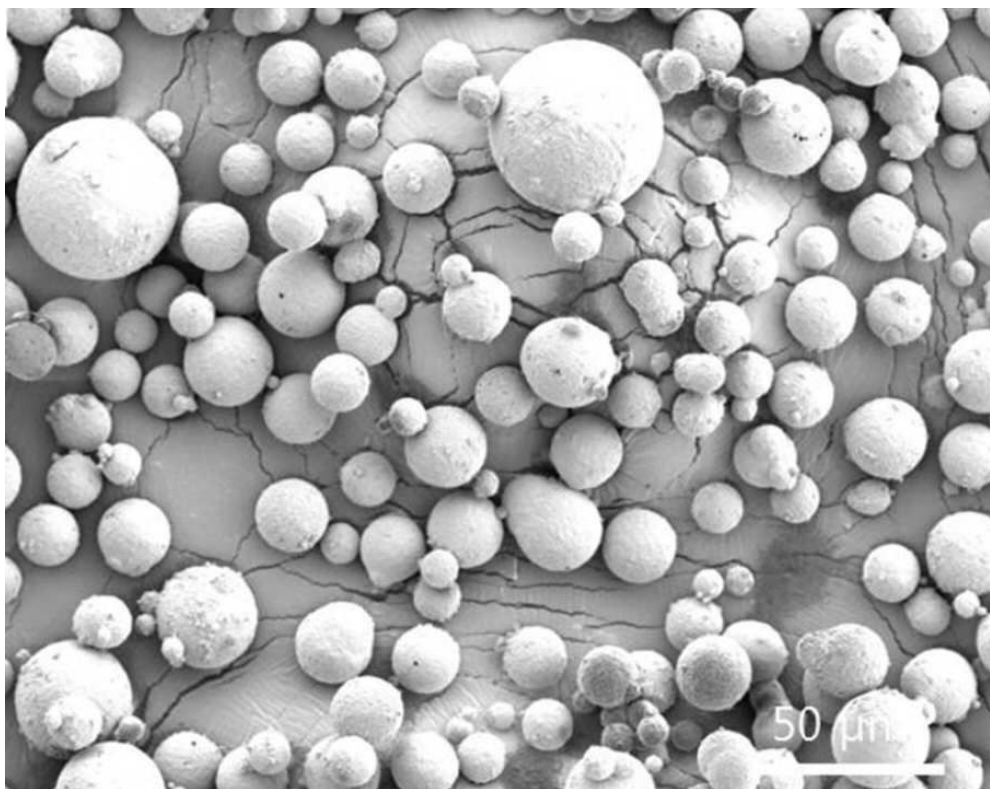
도면2



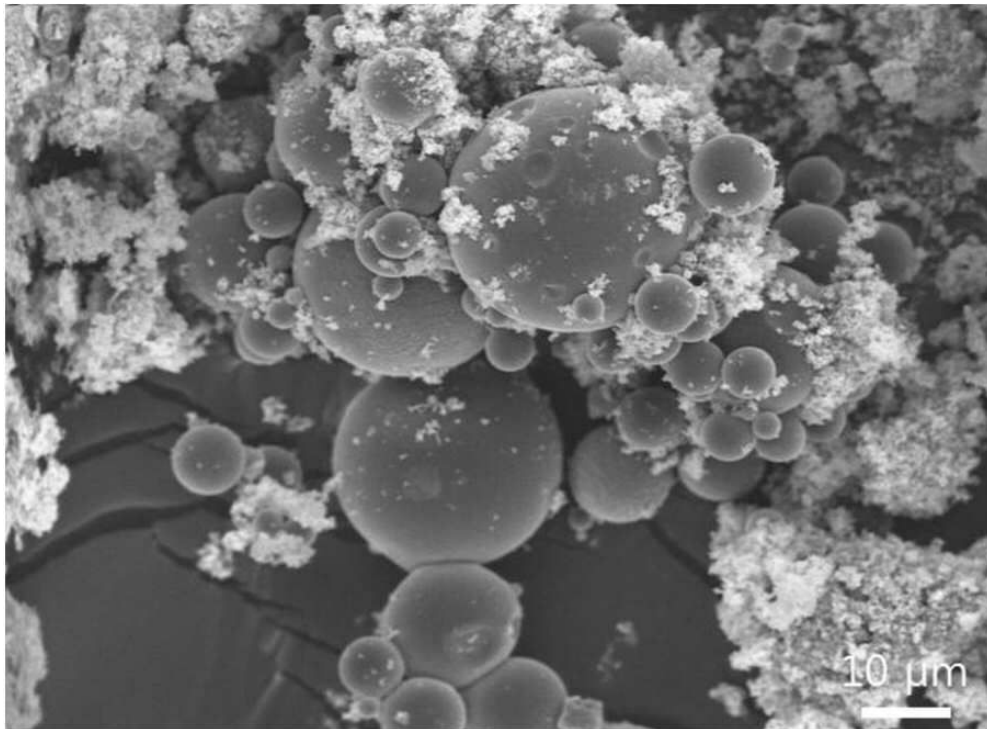
도면3



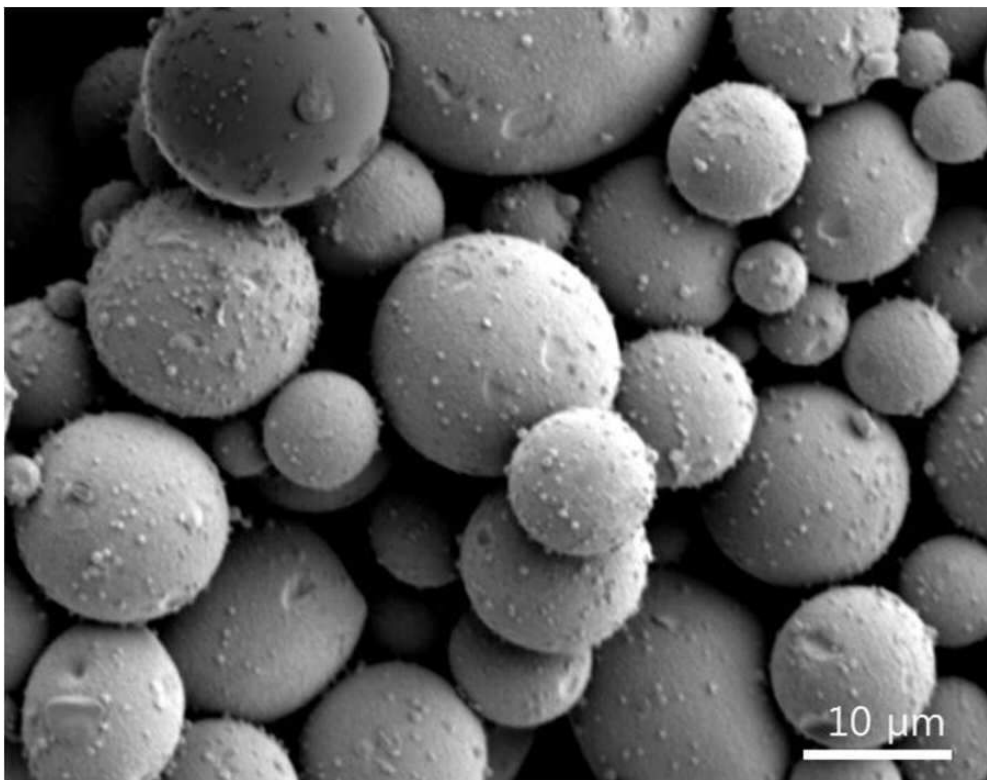
도면4



도면5



도면6



도면7

