

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구  
국제사무국



(10) 국제공개번호

(43) 국제공개일  
2017년 11월 16일 (16.11.2017) WIPO | PCT

WO 2017/196037 A1

- (51) 국제특허분류:  
C01B 32/182 (2017.01) B01J 19/00 (2006.01)  
B01J 3/00 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2017/004754
- (22) 국제출원일: 2017년 5월 8일 (08.05.2017)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:  
10-2016-0057535 2016년 5월 11일 (11.05.2016) KR
- (71) 출원인: 주식회사 엘지화학 (LG CHEM, LTD.) [KR/KR]; 07336 서울시 영등포구 여의대로 128, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 김은정 (KIM, Eun Jeong); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학 기술연구원, Daejeon (KR). 유광현 (YOO, Kwang Hyun); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학 기술연구원, Daejeon (KR). 임예훈 (IM, Ye Hoon); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학 기술연구원, Daejeon (KR). 이진영 (LEE, Jin Yeong); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학 기술연구원, Daejeon (KR). 권원종 (KWON, Won Jong); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학 기술연구원, Daejeon (KR).
- (74) 대리인: 특허법인 다나 (DANA PATENT LAW FIRM); 06242 서울시 강남구 역삼로 3길 11 광성빌딩 신관 5층, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT,

AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

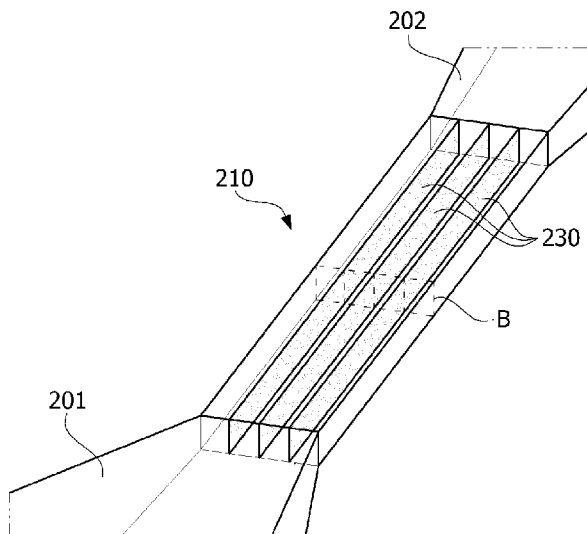
- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(54) Title: HIGH PRESSURE HOMOGENIZER AND METHOD FOR MANUFACTURING GRAPHENE USING SAME

(54) 발명의 명칭: 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법



(57) Abstract: The present invention relates to a high pressure homogenizer and a method for manufacturing graphene using the same. An aspect of the present invention provides a high pressure homogenizer comprising a channel module including a microchannel through which an object to be homogenized passes. The channel module includes one or more baffles arranged to partition the microchannel into a plurality of spaces. Each of the baffles is arranged to partition the microchannel into two spaces in the direction of the width or height thereof.

(57) 요약서: 본 발명은 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법에 관한 것으로, 본 발명의 일 측면에 따르면, 균질화를 위한 대상물이 통과하는 마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈을 포함하며, 채널 모듈은 상기 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플을 포함하고, 배플은 상기 마이크로 채널을 폭 방향 또는 높이 방향에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련된 고압 균질화 장치가 제공된다.



WO 2017/196037 A1

## 명세서

### 발명의 명칭: 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법 기술분야

- [1] 본 발명은 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법에 관한 것이다.  
[2] 본 출원은 2016년 5월 11일자 한국 특허 출원 제10-2016-0057535에 기초한 우선권의 이익을 주장하며, 해당 한국 특허 출원의 문헌에 개시된 모든 내용은 본 명세서의 일부로서 포함된다.

### 배경기술

- [3] 그래핀은 탄소 원자들이 2차원 상에서  $sp^2$  결합에 의한 6각형 모양으로 연결된 배열을 이루면서 탄소 원자층에 대응하는 두께를 갖는 반 금속성 물질이다. 최근, 한 층의 탄소 원자층을 갖는 그래핀 시트는 매우 우수한 전기 전도도를 갖는 것으로 보고된 바 있다.
- [4] 그래핀의 뛰어난 특성으로 인해, 그라파이트 등 탄소계 소재로부터 그래핀을 보다 효과적으로 양산할 수 있는 다양한 방법이 제안 또는 연구되고 있다. 특히, 보다 얇은 두께 및 대면적을 갖는 그래핀 시트 또는 플레이크(flake)를 용이하게 제조할 수 있는 방법에 관한 연구가 다양하게 이루어지고 있다.
- [5] 도 1은 그라파이트(G)를 통해 그래핀 플레이크(GF)(또는 그래핀)을 제조하는 과정을 설명하기 위한 개념도이다.
- [6] 그래핀의 제조방법으로 사용되는 고압 균질화 장치(HPH: High Pressure Homogenizer)는 마이크로미터 스케일의 직경을 갖는 미세 유로에 고압을 가함으로써, 통과하는 물질에 강한 전단력(shear force)을 가하는 장치이다. 특히, 고압 균질화 장치를 이용하여 그라파이트를 박리할 경우, 그래핀 제조 수율을 높일 수 있다는 장점이 있다.
- [7] 구체적으로, 고압 균질화 장치를 이용하는 경우, 초고압으로 추진된 그라파이트 분산액이 마이크로 채널을 통과하는 동안 그라파이트에 인가되는 전단 응력으로 그라파이트가 박리됨에 따라 그래핀이 제조되고 있다. 이때, 그라파이트는 대략 수백 nm의 두께를 갖고, 그래핀은 대략 2 내지 30 nm의 두께를 갖는다.
- [8] 한편, 그래핀의 박리를 위해서는 층간 결합력을 깰 수 있는 수준의 전단 응력이 생성되도록 마이크로 채널 내에 적절한 유동장을 형성시키는 것이 중요하다. 고압 균질화 장치를 이용한 그래핀 박리 공정에서, 마이크로 채널 내부의 벽면 근처에는 벽면 점착 조건에 의해 속도구배가 커져 큰 전단 응력이 발생한다. 그러나 중심부에서는 속도 구배가 작아 전단응력이 작게 나타나므로, 박리에 필요한 임계 전단응력보다 낮아져 박리가 이루어지지 않는 문제가 있다.

### 발명의 상세한 설명

#### 기술적 과제

- [9] 본 발명은 마이크로 채널 내에 박리 유효 영역을 증가시킬 수 있는 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법을 제공하는 것을 해결하고자 하는 과제로 한다.

### 과제 해결 수단

- [10] 상기한 과제를 해결하기 위하여, 본 발명의 일 측면에 따르면, 균질화를 위한 대상물이 통과하는 마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈을 포함하며, 채널 모듈은 상기 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플을 포함하고, 배플은 상기 마이크로 채널을 폭 방향 또는 높이 방향에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련된 고압 균질화 장치가 제공된다.
- [11] 또한, 본 발명의 또 다른 측면에 따르면, 균질화를 위한 대상물이 통과하는 마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈을 포함하며, 채널 모듈은 마이크로 채널로 대상물을 공급하는 전단 유로와 마이크로 채널을 통과한 대상물이 유입되는 후단 유로 및 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플을 포함하고, 배플은 상기 마이크로 채널을 폭 방향 또는 높이 방향에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련되며, 전단 유로는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 작아지도록 마련되고, 후단 유로는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 증가하도록 고압 균질화 장치가 제공된다.
- [12] 또한, 본 발명의 또 다른 측면에 따르면, 고압 균질화 장치를 사용한 그래핀 제조 방법에 있어서, 그라파이트를 포함하는 용액을 채널 모듈에 공급하는 단계 및 채널 모듈에 압력을 가하여 그라파이트를 포함하는 용액을 통과시키는 단계를 포함하는 그래핀 제조방법이 제공된다.

### 발명의 효과

- [13] 이상에서 살펴본 바와 같이, 본 발명의 적어도 일 실시예와 관련된 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법은 다음과 같은 효과를 갖는다.
- [14] 본 발명에 따르면, 고압 균질화 장치를 이용하여, 그라파이트로부터 그래핀 단일층을 박리하는 공정에서, 마이크로 채널 내 박리 유효 영역을 증가시켜 생산성을 향상시킬 수 있다.
- [15] 구체적으로, 그래핀 박리에 필요한 임계전단응력(예를 들어,  $10^5$  1/s) 이상의 전단 응력(shear rate) 가해지는 영역을 증가시키기 위하여, 마이크로 채널 내에 하나 이상의 배플(baffle)을 배치시킨다. 상기 배플에 의하여, 마이크로 채널 내부를 구획함으로써, 벽 면적을 증가시키고, 전단응력이 크게 나타나는 박리 유효 영역을 증가시킬 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

- [16] 도 1은 그라파이트를 통해 그래핀 플레이크를 제조하는 과정을 설명하기 위한 개념도이다.
- [17] 도 2는 본 발명의 일 실시예와 관련된 고압 균질화 장치를 나타내는

개념도이다.

- [18] 도 3은 도 2에 도시된 채널 모듈을 나타내는 사시도이다.
- [19] 도 4는 채널 모듈의 제1 실시예를 나타내는 사시도이다.
- [20] 도 5는 도 4의 A 부분에서의 시뮬레이션 결과이다.
- [21] 도 6은 채널 모듈의 제2 실시예를 나타내는 사시도이다.
- [22] 도 7은 도 6의 B 부분에서의 시뮬레이션 결과이다.

### 발명의 실시를 위한 형태

- [23] 이하, 본 발명의 일 실시예에 따른 고압 균질화 장치 및 이를 이용한 그래핀의 제조방법을 첨부된 도면을 참고하여 상세히 설명한다.
- [24] 또한, 도면 부호에 관계없이 동일하거나 대응되는 구성요소는 동일 또는 유사한 참조번호를 부여하고 이에 대한 중복 설명은 생략하기로 하며, 설명의 편의를 위하여 도시된 각 구성 부재의 크기 및 형상은 과장되거나 축소될 수 있다.
- [25] 도 2는 본 발명의 일 실시예와 관련된 고압 균질화 장치(100)를 나타내는 개념도이고, 도 3은 도 2에 도시된 채널 모듈(200)을 나타내는 사시도이다.
- [26] 또한, 도 4는 채널 모듈의 제1 실시예를 나타내는 사시도이고, 도 5는 도 4의 A 부분에서의 시뮬레이션 결과이다.
- [27] 고압 균질화 장치(100)는 마이크로 미터 스케일의 직경을 갖는 마이크로 채널(210)에 고압을 가하여, 이를 통과하는 물질(그래파이트 분산액)에 강한 전단력(shear force)을 가하는 장치를 의미한다. 상기 전단 응력에 의해 마이크로 채널(210)을 통과하는 물질에 파쇄 및 분산이 진행되고, 고분산된 물질을 제조하는데 사용된다.
- [28] 한편, 상기 고압 균질화 장치(100)는 강한 전단응력을 통해 물질의 파쇄 및 분쇄를 위하여 설계 및 제조되기 때문에, 일반적으로 길이가 매우 짧은 마이크로 채널을 사용한다. 그러나, 고압 균질화 장치(100)의 사용 목적에 따라 길이가 짧은 마이크로 채널이 단점으로 작용할 수 있다.
- [29] 특히, 본 발명과 같이, 고압 균질화 장치(100)로 그래파이트(G)를 박리하여 그래핀을 제조하는 경우, 길이가 짧은 마이크로 채널을 사용할 경우, 얇고 균일한 그래핀을 제조하기 위해서 마이크로 채널 통과 횟수를 증가시켜야 하므로 생산성이 낮아지는 문제가 있다. 그 외에도, 마이크로 채널의 길이가 짧으면 마이크로 채널을 통과하는 유체의 속도가 높게 되고, 유체가 유출부(103)의 벽면과 충돌하는 에너지가 높아지게 된다. 이러한 충돌로 인해, 그래핀 자체가 분쇄되어 제조되는 그래핀의 크기가 작아지는 문제가 있다. 따라서, 본 발명에서는, 그래파이트 박리에 요구되는 전단 응력이 적용하는 범위 내에서, 그래핀 자체가 분쇄되지 않고, 또한, 마이크로 채널의 통과 횟수를 감소시킬 수 있는 고압 균질화 장치를 제공한다.
- [30] 도 2를 참조하면, 고압 균질화 장치(100)는 균질화를 위한 대상물이 통과하는

마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈(200)을 포함한다. 상기 대상물은 전술한 그라파이트(G)이다. 상기 고압 균질화 장치(100)는 상기 대상물이 채널 모듈(200) 측으로 공급되는 유입부(101)와, 채널 모듈(200)을 통과한 대상물이 유출되는 유출부(103)를 포함한다. 도 2에서, 도면부호 10은 그라파이트(G) 분산액이 수용된 용기를 나타내고, 도면부호 20은 유출부(103)로부터 회수된 그래핀(GF)이 수용된 용기를 나타낸다. 또한, 상기 고압 균질화 장치(100)는 대상물이 채널 모듈(200)을 통과하도록 가압하기 위한 압력을 발생시키는 펌프를 포함한다. 상기 펌프에 의해 발생된 압력으로 대상물이 마이크로 채널(210)을 통과하면서 균질화가 이루어진다.

- [31] 한편, 상기 채널 모듈(200)은 마이크로 채널(210)로 대상물을 공급하는 전단 유로(201)와 마이크로 채널(210)을 통과한 대상물이 유입되는 후단 유로(202)를 포함한다. 이때, 전단 유로(201)는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 작아지도록 마련되고, 후단 유로(202)는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 증가하도록 마련된다. 또한, 마이크로 채널(210)은 대상물의 이동 방향을 따라 유동 면적이 일정하게 마련될 수 있다.
- [32] 본 발명에서 대상물은 그라파이트(G)로서, 상기 마이크로 채널(210) 내에서 강한 전단 응력(shear rate)에 의하여 박리가 일어나 그래핀(GF)이 제조된다. 이때, 그라파이트 박리에 요구되는 전단력이 적용되면서, 동시에 전단력을 받는 구간이 길어지는 한편, 마이크로 채널(210)을 통과한 유체가 유출부(103)의 벽면에 충돌하는 에너지를 줄여 그래핀(GF) 자체가 분쇄되지 않도록, 상기 마이크로 채널의 길이는 2mm 내지 1000mm인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게, 상기 마이크로 채널의 길이는 2mm 내지 60mm일 수 있다.
- [33] 유동장 시뮬레이션을 통해, 고압 균질화 장치(100) 내부 유동을 분석한 결과, 고압 균질화 장치 내부에서 나타내는 에너지 소모는, 마이크로 채널 입구(부차적 손실), 마이크로 채널 내부(직관 손실), 마이크로 채널 출구(부차적 손실)에서의 에너지 손실로 구분됨을 확인하였다. 구체적으로, 마이크로 채널 입구(전단 유로 측) 및 마이크로 채널 출구(후단 유로 측)에서 유동 면적(유로 단면적)이 변하면서 에너지 소모가 크고, 마이크로 채널 내부에서의 에너지 소모는 전체 에너지 소모의 약 5%이내인 것으로 확인되었다. 이를 근거로, 마이크로 채널(210)의 길이를 증가시켜도, 그에 따른 에너지 소모 및 유속의 감소가 미미하고, 마이크로 채널(210)의 전체 길이에 걸쳐 그래핀 박리에 요구되는 전단 응력이 적용되는 것을 확인하였다.
- [34] 또한, 마이크로 채널(210)의 길이가 30mm이상이 경우는, 마이크로 채널(210)의 길이가 2mm인 고압 균질화 장치에서 그래핀 박리 공정을 15회 반복 수행한 경우와 동일한 효과가 있음을 확인하였다. 따라서, 마이크로 채널(210)의 길이를 증가시킴으로써 마이크로 채널 통과 횟수를 감소시킬 수 있으므로, 생산성을 높일 수 있다.
- [35] 도 4 및 도 5를 참조하면, 마이크로 채널(210)은 균질화 대상물의 이동 방향에

수직하는 단면(A)(유로 단면)이 직사각형 형상일 수 있다. 또한, 상기 마이크로 채널(210)의 단면은 폭(x축 방향의 길이)이 높이(y축 방향의 길이)보다 큰 직사각형 형상일 수 있다. 또한, 상기 마이크로 채널(210)은 폭과 높이의 비율이 2:1 이상인 것이 바람직하고, 특히, 상기 마이크로 채널(210)은 폭과 높이의 비율이 2:1 내지 10:1이 되도록 형성될 수 있다. 또한, 직사각형의 폭 및 너비는 각각  $10\mu\text{m}$  내지  $50000\mu\text{m}$ 일 수 있다. 종래 고압 균질화 장치에서 마이크로 채널의 단면은 원형이지만, 본 발명에서는 원형에 비하여 표면적이 큰 직사각형 형태를 사용함으로써, 유로 단면적을 높일 수 있다. 또한, 마이크로 채널의 단면적은  $1.0 \times 10^2\mu\text{m}^2$  내지  $1.0 \times 10^8\mu\text{m}^2$ 일 수 있다.

- [36] 또한, 고압 균질화 장치(100)를 사용한 그래핀 제조 방법에 있어서, 그래핀 제조방법은, 그래파이트(G)를 포함하는 용액을 채널 모듈(200)에 공급하는 단계 및 채널 모듈(200)에 압력을 가하여 그래파이트(G)를 포함하는 용액을 통과시키는 단계를 포함한다. 상기 압력은 100 내지 3000 bar일 수 있다. 또한, 상기 유출부(103)로 그래핀(GF) 분산액을 회수한 다음, 이를 다시 유입부(101)에 재투입할 수 있다. 상기 재투입 과정은 2회 내지 30회 반복하여 수행할 수 있다. 상기 재투입 과정은 단일의 고압 균질화 장치를 반복하여 사용하거나, 복수 개의 고압 균질화 장치를 사용하여 차례로 수행할 수도 있다.
- [37] 또한, 상기 그래핀 제조방법은 회수한 그래핀(GF) 분산액으로부터 그래핀을 회수 및 건조하는 단계를 포함할 수 있다. 상기 회수 단계는 원심 분리, 감압 여과 또는 가압 여과로 진행될 수 있다. 상기 건조 단계는 약 30 내지  $200^\circ\text{C}$ 의 온도 하에 진공 건조 또는 일반 건조하여 수행할 수 있다. 또한, 본 발명에 따라 제조되는 그래핀은 크기가 크고 균일하여, 그래핀 고유의 특성 발현에 유리한 장점을 갖는다.
- [38] 또한, 도 6은 채널 모듈의 제2 실시예를 나타내는 사시도이고, 도 7은 도 6의 B 부분에서의 시뮬레이션 결과이다.
- [39] 본 실시예에서, 상기 채널 모듈(200)은 상기 마이크로 채널(210)을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플(230)을 포함한다. 또한, 배플(230)은 상기 마이크로 채널을 폭 방향(x축 방향) 또는 높이 방향(y축 방향)에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련된다. 이하, 설명의 편의를 위하여, 폭 방향을 따라 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하는 경우를 예로 들어 설명한다. 예를 들어, 상기 채널 모듈(200)은 대상물이 배플(230)에 의해 구획된 각각의 공간(231, 232, 233, 234)을 통과하도록 마련된다.
- [40] 도 5 및 도 7의 시뮬레이션 결과를 참조하면, 상기 시뮬레이션은 도 3에 도시된 바와 같은 채널 모듈(200)을 이용하여 실시되었다. 이때, 마이크로 채널(210)의 길이는 2mm이고, 폭은  $320\mu\text{m}$ 이며, 높이는  $100\mu\text{m}$ 이다.
- [41] 또한, 그래핀 박리에 필요한 임계 전단 응력(shear rate)은  $10^5$  1/s을 기준으로 하였다. 도 5의 A영역 및 도 7의 B영역의 전체 유로 단면적은 동일하다. 즉, 도 5 및 도 7에 도시된 마이크로 채널(210)의 폭 및 높이는 동일하다. 다만, 제2

실시예에서는, 마이크로 채널(210) 내에 폭방향(x축 방향)으로 3개의 배플(230)을 동일한 간격으로 배치시킴으로써, 마이크로 채널(210) 내의 유로 단면적을 4개(231 내지 234)로 구획하였다. 또한, 도 5 및 도 7에서, 각각 마이크로 채널을 유동하는 그라파이트 분산액은 동일한 것으로, 동일 유량 조건으로 실험하였다. 다만, 동일 유량 조건을 만족시키기 위하여, 도 7에 도시된 마이크로 채널에 가해지는 압력(펌프 압력)(약, 9.3bar)은 도 5에 도시된 마이크로 채널에 가해지는 압력(약, 6bar)보다 크다.

[42] 실험 결과, 마이크로 채널 내에 배플을 설치하지 않은 제1 실시예의 경우, 유로 단면을 기준으로 중앙 영역(211)에서 임계 전단 응력(shear rate)보다 낮은 전단 응력이 발생하는 것이 확인되었다. 도 5에서, 도면 부호 212(파란색 영역)는 박리 유효 영역을 나타낸다. 전술한 바와 같이, 박리 유효 영역은 임계 전단 응력(shear rate)( $10^5$  1/s)보다 큰 전단 응력이 발생하는 영역을 나타낸다.

[43] 이와는 다르게, 도 7에서는 도 5에 비하여, 박리 유효 면적(파란색 영역)이 증가(약 23%)하는 것을 확인할 수 있다.

[44] 본 발명에 따르면, 고압 균질화 장치를 이용하여, 그라파이트로부터 그래핀 단일층을 박리하는 공정에서, 마이크로 채널 내 박리 유효 영역을 증가시켜 생산성을 향상시킬 수 있다.

[45] 구체적으로, 그래핀 박리에 필요한 임계전단응력(예를 들어,  $10^5$  1/s) 이상의 전단 응력(shear rate) 가해지는 영역을 증가시키기 위하여, 마이크로 채널 내에 하나 이상의 배플(baffle)을 배치시킨다. 상기 배플에 의하여, 마이크로 채널 내부를 구획함으로써, 벽 면적을 증가시키고, 전단응력이 크게 나타나는 박리 유효 영역을 증가시킬 수 있다.

[46] 위에서 설명된 본 발명의 바람직한 실시예는 예시의 목적을 위해 개시된 것이고, 본 발명에 대한 통상의 지식을 가지는 당업자라면 본 발명의 사상과 범위 안에서 다양한 수정, 변경, 부가가 가능할 것이며, 이러한 수정, 변경 및 부가는 하기의 특허청구범위에 속하는 것으로 보아야 할 것이다.

### 산업상 이용가능성

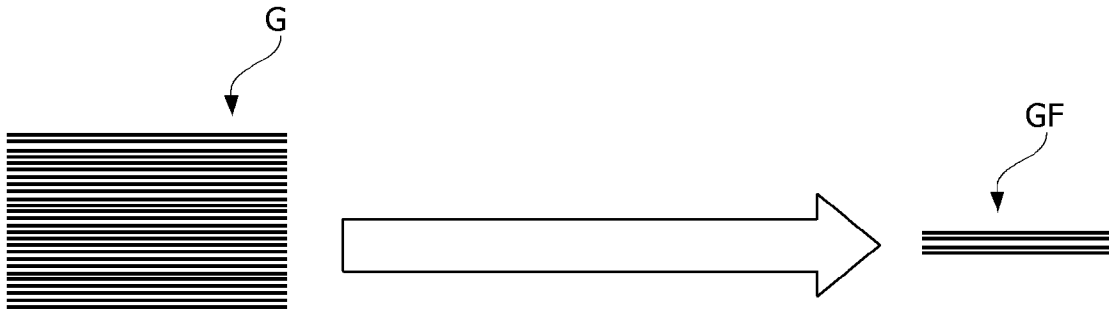
[47] 본 발명에 따르면, 배플을 통해 그래핀 박리에 필요한 임계전단응력(예를 들어,  $10^5$  1/s) 이상의 전단 응력이 가해지는 영역을 증가시킬 수 있고, 상기 배플에 의하여, 마이크로 채널 내부를 구획함으로써, 벽 면적을 증가시키고, 박리 유효 영역을 증가시킬 수 있다.

## 청구범위

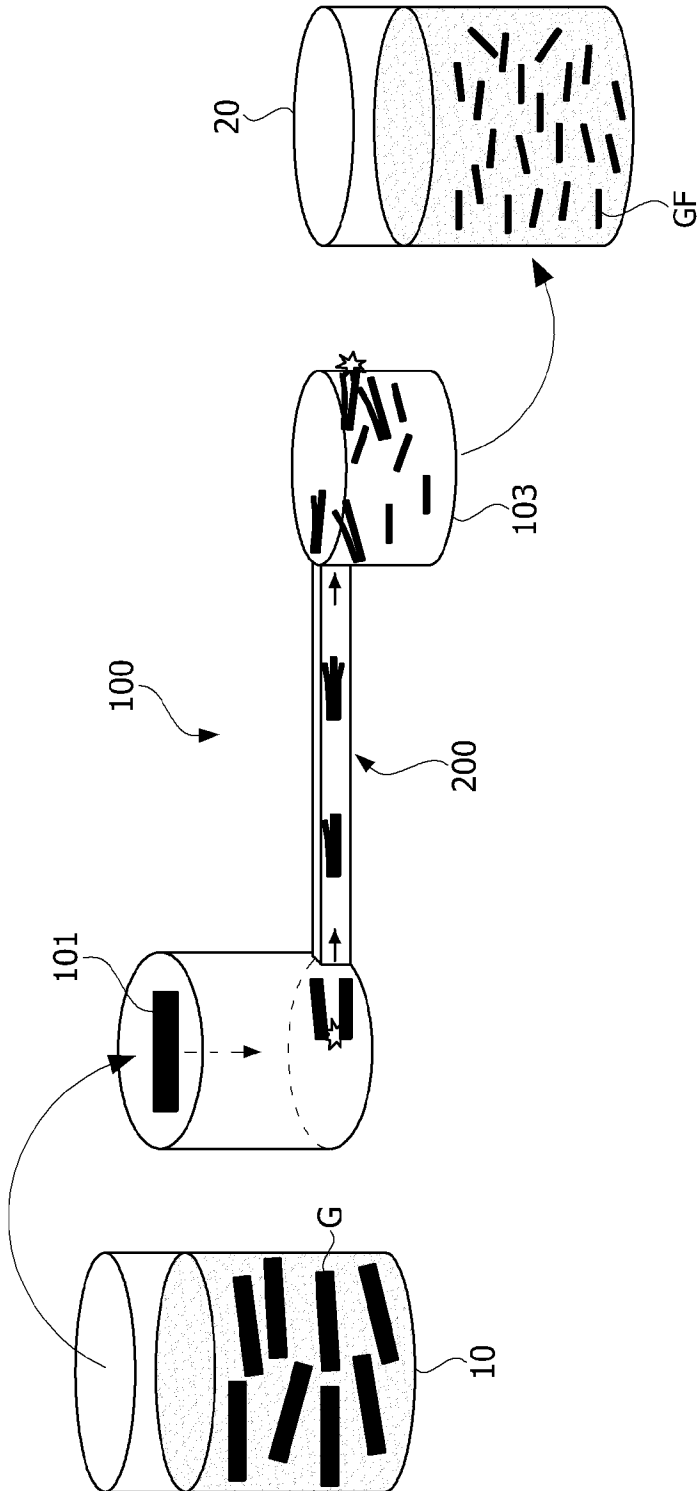
- [청구항 1] 균질화를 위한 대상물이 통과하는 마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈을 포함하며,  
채널 모듈은 상기 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플을 포함하고,  
배플은 상기 마이크로 채널을 폭 방향 또는 높이 방향에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련된 고압 균질화 장치.
- [청구항 2] 제 1 항에 있어서,  
상기 채널 모듈은 대상물이 배플에 의해 구획된 각각의 공간을 통과하도록 마련된 고압 균질화 장치.
- [청구항 3] 제 1 항에 있어서,  
상기 마이크로 채널의 길이는 2mm 내지 1000mm인 고압 균질화 장치.
- [청구항 4] 제 1 항에 있어서,  
마이크로 채널은 균질화 대상물의 이동 방향에 수직하는 단면이 직사각형 형상인 고압 균질화 장치.
- [청구항 5] 제 4 항에 있어서,  
상기 마이크로 채널의 단면은 폭이 높이보다 큰 직사각형 형상인 고압 균질화 장치.
- [청구항 6] 제 4 항에 있어서,  
상기 마이크로 채널은 폭과 높이의 비율이 2:1 내지 10:1이 되도록 형성된 고압 균질화 장치.
- [청구항 7] 제 1 항에 있어서,  
마이크로 채널의 단면적은  $1.0 \times 10^2 \mu\text{m}^2$  내지  $1.0 \times 10^8 \mu\text{m}^2$ 인 고압 균질화 장치.
- [청구항 8] 균질화를 위한 대상물이 통과하는 마이크로 채널을 포함하는 채널 모듈을 포함하며,  
채널 모듈은 마이크로 채널로 대상물을 공급하는 전단 유로와 마이크로 채널을 통과한 대상물이 유입되는 후단 유로 및 마이크로 채널을 복수 개의 공간으로 구획하도록 배치된 하나 이상의 배플을 포함하고,  
배플은 상기 마이크로 채널을 폭 방향 또는 높이 방향에 따라 2개의 공간으로 구획하도록 마련되며,  
전단 유로는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 작아지도록 마련되고, 후단 유로는 대상물의 이동 방향을 따라 적어도 일부에서 유동 면적이 증가하도록 고압 균질화 장치.
- [청구항 9] 제 8 항에 있어서,  
상기 채널 모듈은 대상물이 배플에 의해 구획된 각각의 공간을 통과하도록 마련된 고압 균질화 장치.

- [청구항 10] 제 8 항에 있어서,  
마이크로 채널은 대상물의 이동 방향을 따라 유동 면적이 일정한 고압  
균질화 장치.
- [청구항 11] 제 8 항에 있어서,  
마이크로 채널은 대상물의 이동 방향에 수직하는 단면이 직사각형  
형상인 고압 균질화 장치.
- [청구항 12] 제 8 항에 있어서,  
상기 마이크로 채널의 단면은 폭이 높이보다 큰 직사각형 형상인 고압  
균질화 장치.
- [청구항 13] 제 1 항 내지 제 7 항 중 어느 한 항에 따른 고압 균질화 장치를 사용한  
그래핀 제조 방법에 있어서,  
그라파이트를 포함하는 용액을 채널 모듈에 공급하는 단계; 및  
채널 모듈에 압력을 가하여 그라파이트를 포함하는 용액을 통과시키는  
단계를 포함하는 그래핀 제조방법.
- [청구항 14] 제 13항에 있어서,  
상기 압력은 100 내지 3000 bar인 그래핀 제조방법.

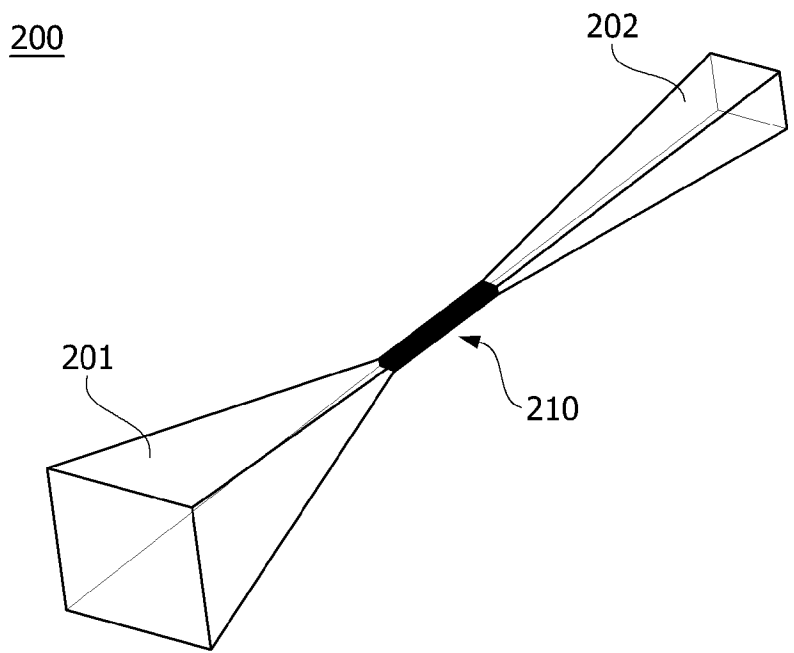
[도1]



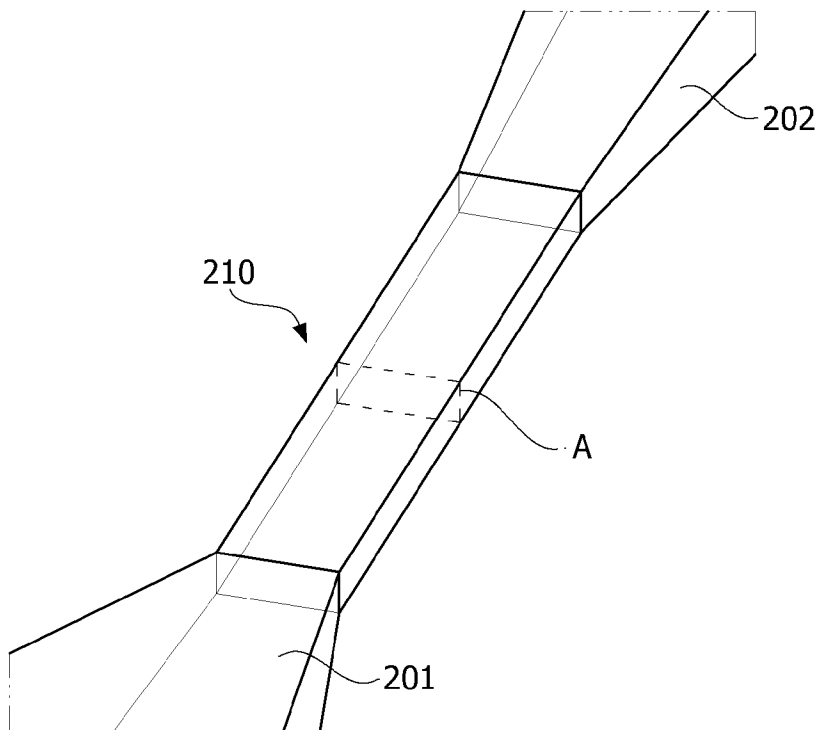
[도2]



[도3]

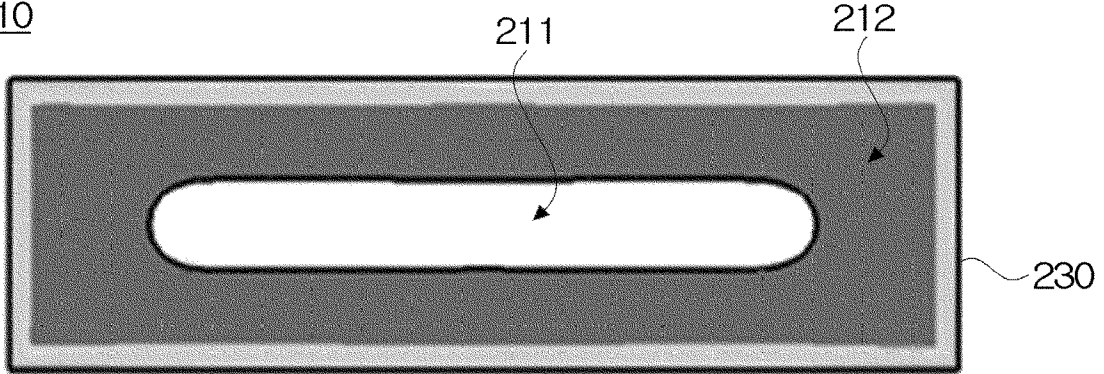
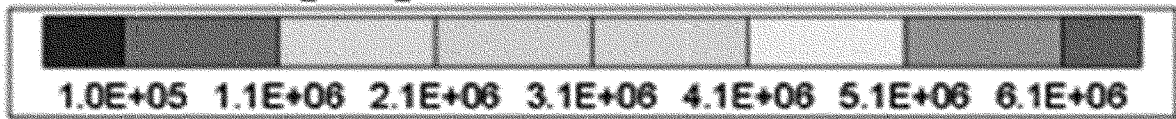


[도4]

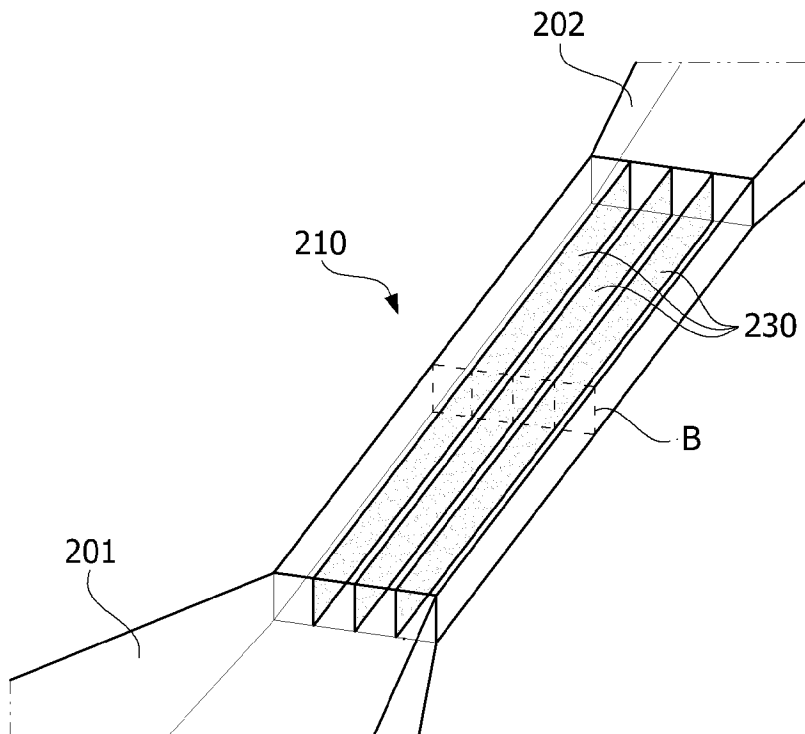


[도5]

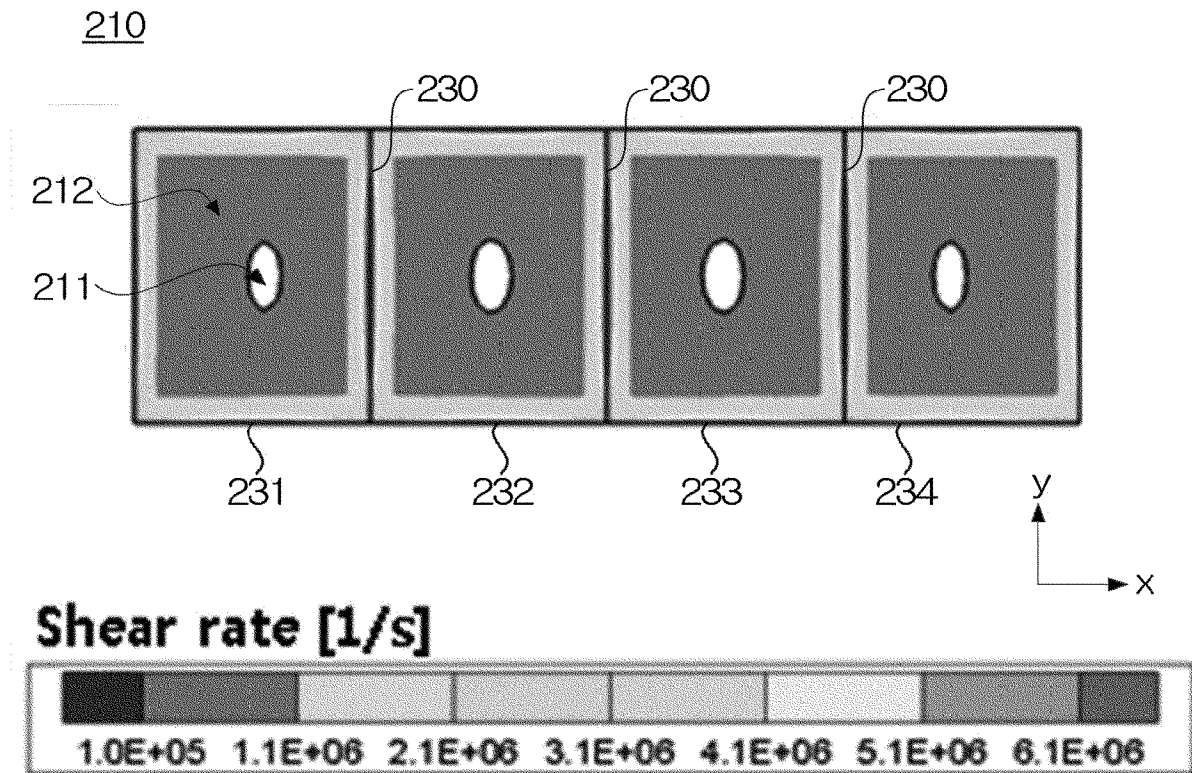
210

**Shear rate [1/s]**

[도6]



[도7]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2017/004754

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 32/182(2017.01)i, B01J 3/00(2006.01)i, B01J 19/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01B 32/182; C12M 1/00; B01J 19/10; H01B 1/04; C01B 31/02; C01B 31/04; B01J 19/00; C12M 1/34; C07C 5/48; B01J 3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) &amp; Keywords: high pressure homogenization device, graphene manufacture, micro channel, a plurality of spaces, section, baffle, square shape, front flowpath, rear flowpath, change of area according to moving direction, graphite, pressure

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 10-2015-0076093 A (LG CHEM, LTD.) 06 July 2015 See paragraphs [0057]-[0065]; and figure 1.	1-14
A	NACKEN, T. J. et al., "Delamination of Graphite in a High Pressure Homogenizer," RSC Advances, 2015, vol. 5, no. 71, pages 57328-57338 (online published: 23 June 2015) See abstract; page 57329; and figure 1.	1-14
A	WO 2012-139209 A1 (THE UNIVERSITY OF BRITISH COLUMBIA) 18 October 2012 See abstract; paragraph [0125]; and figures 1-4.	1-14
A	EP 2495216 A2 (N-BARO TECH. CO., LTD.) 05 September 2012 See claims 1-26.	1-14
A	JP 5610765 B2 (VELOCYS INC.) 22 October 2014 See claims 1-16.	1-14
A	KR 10-1264316 B1 (KOREA ELECTROTECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE) 22 May 2013 See claims 1-3, 5-10, 12-14; and figure 1.	1-14



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 JULY 2017 (27.07.2017)

Date of mailing of the international search report

28 JULY 2017 (28.07.2017)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office  
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,  
Republic of Korea

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
Information on patent family members

International application No.

**PCT/KR2017/004754**

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2015-0076093 A	06/07/2015	CN 105873858 A	17/08/2016
		EP 3056468 A1	17/08/2016
		JP 2017-500265 A	05/01/2017
		KR 10-1666478 B1	14/10/2016
		TW 201536676 A	01/10/2015
		TW 1543931 B	01/08/2016
		WO 2015-099378 A1	02/07/2015
WO 2012-139209 A1	18/10/2012	AU 2012-243396 A1	31/10/2013
		CA 2833026 A1	18/10/2012
		EP 2697357 A1	19/02/2014
		JP 2014-510539 A	01/05/2014
		JP 5990256 B2	07/09/2016
		US 2015-0300939 A1	22/10/2015
EP 2495216 A2	05/09/2012	CN 102471068 A	23/05/2012
		CN 102471068 B	17/09/2014
		EP 2493812 A1	05/09/2012
		KR 10-1053933 B1	04/08/2011
		KR 10-1337970 B1	06/12/2013
		KR 10-2011-0016420 A	17/02/2011
		KR 10-2011-0036721 A	08/04/2011
		US 2012-0201738 A1	09/08/2012
		US 8968695 B2	03/03/2015
		WO 2011-019095 A1	17/02/2011
		WO 2011-019184 A2	17/02/2011
		WO 2011-019184 A3	16/06/2011
JP 5610765 B2	22/10/2014	CA 2645218 A1	04/10/2007
		CA 2645218 C	07/10/2014
		CA 2857176 A1	04/10/2007
		CA 2857176 C	30/08/2016
		CN 101426752 A	06/05/2009
		CN 101426752 B	13/08/2014
		CN 102836675 A	26/12/2012
		CN 102836675 B	15/06/2016
		EP 2004579 A2	24/12/2008
		EP 2397457 A3	20/11/2013
		JP 2009-530400 A	27/08/2009
		US 2007-0225532 A1	27/09/2007
		US 2011-0112348 A1	12/05/2011
		US 2017-0007978 A1	12/01/2017
		US 7847138 B2	07/12/2010
		WO 2007-111997 A2	04/10/2007
WO 2007-111997 A3	24/01/2008		
KR 10-1264316 B1	22/05/2013	KR 10-2012-0049679 A	17/05/2012

**A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))**  
C01B 32/182(2017.01)i, B01J 3/00(2006.01)i, B01J 19/00(2006.01)i

**B. 조사된 분야**  
조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)  
C01B 32/182; C12M 1/00; B01J 19/10; H01B 1/04; C01B 31/02; C01B 31/04; B01J 19/00; C12M 1/34; C07C 5/48; B01J 3/00

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌  
한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC  
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))  
eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 고압 균질화 장치, 그래핀 제조, 마이크로 채널, 복수 공간, 구획, 배플, 직사각형 형상, 전단 유로, 후단 유로, 이동 방향에 따른 면적 변화, 그래파이트, 압력

**C. 관련 문헌**

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
A	KR 10-2015-0076093 A (주식회사 엘지화학) 2015.07.06 단락 [0057]-[0065]; 및 도면 1 참조.	1-14
A	NACKEN, T. J. 등, "Delamination of graphite in a high pressure homogenizer," RSC Advances, 2015년, 5권, 71호, 페이지 57328-57338 (온라인공개: 2015.06.23) 요약; 페이지 57329; 및 도면 1 참조.	1-14
A	WO 2012-139209 A1 (THE UNIVERSITY OF BRITISH COLUMBIA) 2012.10.18 요약; 단락 [0125]; 및 도면 1-4 참조.	1-14
A	EP 2495216 A2 (N-BARO TECH CO., LTD.) 2012.09.05 청구항 1-26 참조.	1-14
A	JP 5610765 B2 (VELOCYS INC.) 2014.10.22 청구항 1-16 참조.	1-14
A	KR 10-1264316 B1 (한국전기연구원) 2013.05.22 청구항 1-3, 5-10, 12-14; 및 도면 1 참조.	1-14

추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.  대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

\* 인용된 문헌의 특별 카테고리:  
 "A" 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌 "T" 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌  
 "E" 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌 "X" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.  
 "L" 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌 "Y" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.  
 "O" 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌 " & " 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌  
 "P" 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일 2017년 07월 27일 (27.07.2017)	국제조사보고서 발송일 2017년 07월 28일 (28.07.2017)
--	---

ISA/KR의 명칭 및 우편주소 대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-481-8578	심사관 남의호 전화번호 +82-42-481-5580
---	------------------------------------



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2015-0076093 A	2015/07/06	CN 105873858 A	2016/08/17
		EP 3056468 A1	2016/08/17
		JP 2017-500265 A	2017/01/05
		KR 10-1666478 B1	2016/10/14
		TW 201536676 A	2015/10/01
		TW I543931 B	2016/08/01
		WO 2015-099378 A1	2015/07/02
WO 2012-139209 A1	2012/10/18	AU 2012-243396 A1	2013/10/31
		CA 2833026 A1	2012/10/18
		EP 2697357 A1	2014/02/19
		JP 2014-510539 A	2014/05/01
		JP 5990256 B2	2016/09/07
		US 2015-0300939 A1	2015/10/22
EP 2495216 A2	2012/09/05	CN 102471068 A	2012/05/23
		CN 102471068 B	2014/09/17
		EP 2493812 A1	2012/09/05
		KR 10-1053933 B1	2011/08/04
		KR 10-1337970 B1	2013/12/06
		KR 10-2011-0016420 A	2011/02/17
		KR 10-2011-0036721 A	2011/04/08
		US 2012-0201738 A1	2012/08/09
		US 8968695 B2	2015/03/03
		WO 2011-019095 A1	2011/02/17
		WO 2011-019184 A2	2011/02/17
WO 2011-019184 A3	2011/06/16		
JP 5610765 B2	2014/10/22	CA 2645218 A1	2007/10/04
		CA 2645218 C	2014/10/07
		CA 2857176 A1	2007/10/04
		CA 2857176 C	2016/08/30
		CN 101426752 A	2009/05/06
		CN 101426752 B	2014/08/13
		CN 102836675 A	2012/12/26
		CN 102836675 B	2016/06/15
		EP 2004579 A2	2008/12/24
		EP 2397457 A3	2013/11/20
		JP 2009-530400 A	2009/08/27
		US 2007-0225532 A1	2007/09/27
		US 2011-0112348 A1	2011/05/12
		US 2017-0007978 A1	2017/01/12
		US 7847138 B2	2010/12/07
		WO 2007-111997 A2	2007/10/04
		WO 2007-111997 A3	2008/01/24
KR 10-1264316 B1	2013/05/22	KR 10-2012-0049679 A	2012/05/17