



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2013-0115469
(43) 공개일자 2013년10월22일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C01B 31/02 (2006.01) *C23C 16/38* (2006.01)

C23C 16/06 (2006.01) *H01M 4/04* (2006.01)

(21) 출원번호 10-2012-0037773

(22) 출원일자 2012년04월12일

심사청구일자 2012년04월12일

(71) 출원인

인하대학교 산학협력단

인천광역시 남구 인하로 100, 인하대학교 (용현동)

(72) 발명자

박성진

서울특별시 서초구 잠원동 녹원한신 APT 102동 707호

한중우

서울특별시 구로구 구로1동 구일우성아파트 207동 2502호

(74) 대리인

이원희

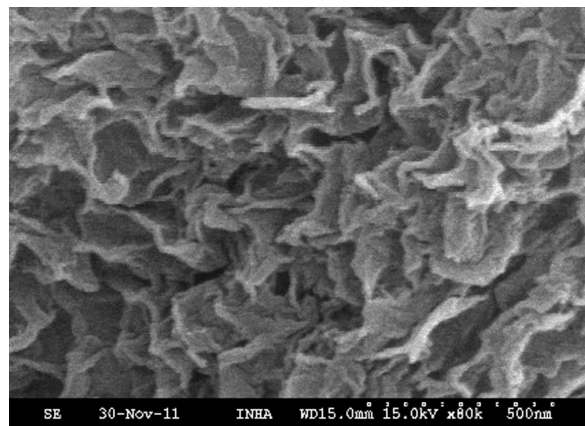
전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 **붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 이의 제조방법**

(57) 요약

본 발명은 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 이의 제조방법에 관한 것으로, 더욱 구체적으로는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드와 함께, 이의 제조방법으로서, 그라파이트 옥사이드를 수성용매하에서 박리하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 단계(단계 1); 상기 분산용액에 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)을 첨가하여 환류시키는 단계(단계 2); 및 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계(단계 3)를 포함하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법에 관한 것이다. 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 산화 및 초음파 조사로 인해 sp^2 혼성 탄소가 파괴된 그래핀 옥사이드를 보레인-테트라하이드로퓨란으로 환원시킴으로써 그래핀 옥사이드 표면에 결합된 산소를 포함하는 작용기를 효과적으로 환원시킴과 동시에 붕소를 미량 도핑시킬 수 있고, 상대적으로 저렴한 그라파이트 옥사이드를 출발물질로 사용함에도 불구하고 그래핀과 동등한 성능을 나타낼 뿐만 아니라 우수한 비정전용량을 갖는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 대량으로 수득할 수 있다.

대표도 - 도1



특허청구의 범위

청구항 1

그라파이트 옥사이드를 수성용매하에서 박리하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 단계(단계 1);
 상기 분산용액에 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)을 첨가하여 환류시키는 단계(단계 2); 및
 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계(단계 3)를 포함하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 단계 1의 수성용매는 물, 에탄올, 디메틸포름아마이드(dimethylformamide, DMF), 디메틸설폭사이드(dimethylsulfoxide, DMSO), 테트라하이드로퓨란(tetrahydrofuran, THF) 및 아세톤 로 이루어지는 군으로부터 선택되는 어느 하나 또는 이들의 혼합용매인 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 상기 단계 1의 박리는 초음파 조사 또는 교반을 이용하여 수행되는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 단계 2의 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)은 상기 단계 1의 그라파이트 옥사이드 중량에 대해 280 ~ 1400 중량%로 포함하는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 단계 3은 상기 단계 2의 용액을 냉각시킴으로써 침전된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 얻는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서, 상기 단계 3 이후에 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 회수하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 7

제6항에 있어서, 상기 회수는 여과, 세척 및 건조단계로 이루어지는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 8

제7항에 있어서, 상기 건조는 공기 중 예비건조 후, 진공조건에서 최종 건조시키는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법.

청구항 9

붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드.

청구항 10

제9항에 있어서, 상기 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 붕소를 0.1 ~ 1.0 원자%로 포함하고 있는 것을 특징으로 하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드.

청구항 11

제9항의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 포함하는 축전기용 전극.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

배경기술

- [0002] 그래핀은 이차원의 판상 구조 형태를 갖는 넓은 표면적을 가진 물질로서, sp^2 혼성 탄소를 포함하여 전기적, 열적, 기계적 특성이 매우 뛰어나 초고용량 캐패시터(capacitor), 이차전지, 수소저장 물질과 같은 에너지 저장물질; 트랜지스터, 센서, 투명전극 및 고분자 복합체 등 다양한 분야에서 각광받고 있는 물질이다.
- [0003] 종래 기계적 박리법(micromechanical exfoliation method)에 의해 그래핀을 제조하는 방법이 알려져 있다. 상기 방법은 스카치 테이프와 같은 접착성 물질을 이용하여 흑연으로부터 한 장의 그래핀을 직접 떼어내는 방식으로 그래핀을 제조하는 방법이다.
- [0004] 성장법(growth method)에 의한 그래핀 제조방법은 화학증착법(chemical vapor deposition, CVD)과 같은 증착방법을 이용하여 원료물질을 기상으로 공급하여 기판상에 한 장의 그래핀을 성장시키는 방법이다.
- [0005] 화학적 박리법(chemical exfoliation method)에 의한 그래핀 제조방법은 흑연을 화학적으로 처리해서 그래핀을 얻는 방법으로서, 물리적 처리에 의한 기계적 박리법과 대조된다.
- [0006] 상기 그래핀을 제조하는 다양한 방법들 중 화학적 박리법은 흑연을 출발물질로 사용하여 그래핀의 생산 단가가 저렴하며 대량생산이 용이하고, 그래핀을 액상에서 균일한 콜로이드 형태로 얻을 수 있어 다양한 형태로 적용할 수 있다. 또한, 다양한 화학적 변형을 가함으로써 사용하고자 하는 목적에 맞게 그래핀에 원하는 특성들을 도입할 수 있다는 장점으로 인하여, 종래 그래핀 제조방법들 중 가장 연구가 많이 진행되고 있는 방법이다.
- [0007] 구체적으로, 상기 화학적 박리법은 흑연을 산화시켜 그라파이트 옥사이드(graphite oxide)를 제조한 후, 간단한 초음파 처리를 통해 수용액 상에서 한 장의 그래핀 옥사이드(graphene oxide) 서스펜션을 만드는 방법이다.

- [0008] 그러나, 상기 화학적 박리법을 이용하여 제조된 그래핀 옥사이드는 산화 및 초음파 처리 과정 중 sp^2 혼성 탄소가 많이 파괴되어 전기 전도도 등과 같은 물리적 성질이 저하되는 문제가 있다. 즉, 흑연을 산화시키는 과정에 산소를 포함하는 작용기들이 그래핀 표면에 결합하게 되고, 이로 인해 친수성 그룹들이 부착됨으로써 그래핀 층간 거리가 멀어지게 되어 그 결과 그래핀의 물성을 좌우하는 sp^2 혼성 탄소가 파괴된다. 따라서, 화학적 박리법을 이용하여 그래핀 옥사이드를 제조하는 경우에는 제조된 그래핀 옥사이드를 환원시켜 sp^2 혼성 탄소를 복원시키는 것이 핵심이다.
- [0009] 현재, 그래핀 옥사이드를 환원시키는 방법으로는 열처리 방법, 수소 플라즈마 가스 처리 방법, 환원제를 사용하는 방법 등이 있다.
- [0010] 예를 들면, 대한민국공개특허 제10-2010-0136576호(공개일: 2010.12.29)는 그래핀 필름을 제조하는 방법에 관한 것이다(특허문헌 1). 상기 방법은 그래핀을 환원시키는 방법으로서 수소 처리하는 방법, 고온 처리하는 방법, 하이드라진 및 암모니아 혼합액에서 습식 환원처리하는 방법 중 한 방법을 이용하여 그래핀을 환원시키는 방법에 대하여 개시하고 있다.
- [0011] 환원제를 사용하여 그래핀 옥사이드를 환원시키는 방법에 있어서, 환원제로는 히드라진(hydrazine) 수화물 또는 히드라진 수화물과 암모니아의 혼합액 등을 대표적으로 사용하며, 상기 히드라진 수화물을 이용한 그래핀 옥사이드의 환원방법은 그래핀 옥사이드 내 산소를 포함하는 물질들을 가장 효과적으로 환원시킬 수 있는 방법으로 알려져왔다.
- [0012] 이외에도 최근에는 대한민국공개특허 제10-2011-0110067호(공개일: 2011.10.06)에서 할로겐 원소가 포함된 환원제를 사용하여 그래핀 옥사이드를 환원시키는 방법이 개시되었다(특허문헌 2). 그러나, 상기 방법은 그래핀 옥사이드를 환원시키기 위해 사용되는 환원제의 양이 수 배로 많다. 또한, 그래핀 옥사이드를 소듐바이카보네이트 용액, 물 및 아세톤 순서로 세정하는 단계를 포함함으로써 발생하는 폐수의 종류 및 양이 많은 문제가 있다.
- [0013] 또한, 그래핀은 화학적 도핑과 같은 방법을 이용하여 그래핀에 탄소 외의 물질을 첨가하여 그래핀의 물리적 특성을 조절할 수 있다. 상기 화학적 도핑은 그래핀의 구성성분인 탄소보다 전자가 많거나 적은 물질을 첨가하여 그래핀의 물리적 특성을 조절하는 방법이다.
- [0014] 예를 들면, 그래핀의 구성성분인 탄소보다 전자가 하나 더 많은 질소를 그래핀에 화학적으로 도핑시키면 자유전자가 더 많아져 그래핀의 전체적인 전자 구조를 변화시킬 수 있다. 한편, 그래핀의 구성성분인 탄소보다 전자가 하나 더 적은 붕소를 화학적으로 도핑시키면 정공이 증가하므로, 마찬가지로 그래핀의 전체적인 전자 구조를 변화시킬 수 있다. 이러한 도핑방법은 모두 제조되는 그래핀의 물리적 특성을 조절할 수 있다.
- [0015] 따라서, 종래에는 상기와 같이 그래핀의 주성분인 탄소 외의 물질을 추가로 도핑시켜 그래핀의 물리적 특성을 조절하기 위한 연구가 활발하게 진행되어 왔다. 특히 질소를 이용한 도핑에 대해서는 많은 연구가 보고된 바 있다. 반면 붕소를 이용한 도핑 연구는 거의 보고되지 않는 실정이다.
- [0016] 종래, 탄소 외의 물질을 도핑시켜 그래핀을 제조하는 다양한 방법들이 공지되어 있다.
- [0017] 대한민국공개특허 제10-2011-0138611호(공개일: 2011.12.28)는 붕소 및 질소로 치환된 그래핀의 제조방법에 관

한 것으로서, 상기 공개특허문헌에는 화학기상증착법을 이용하여 탄소전구체, 붕소전구체 및 질소전구체를 가스 상으로 공급하여 탄소의 일부분이 붕소 및 질소로 치환된 그래핀을 제조하는 방법을 개시하고 있다(특허문헌 3). 그러나, 상기 방법은 제조하고자 하는 그래핀의 원료물질을 가스형태로 공급하기 위해 공정 온도를 고온으로 유지시켜야할 뿐만 아니라, 제어해야 하는 공정 조건의 범위가 너무 광범위하여 산업분야에서 활용도를 높이는 데 한계가 있다. 나아가, 붕소 단독이 아닌 붕소 및 질소를 함께 그래핀에 도핑시키고 각각의 농도를 조절함으로써 그래핀의 물리적 특성을 조절하게 되므로 공정이 복잡하다는 문제가 있다.

[0018] 상기 제조방법을 포함하여 질소를 도핑시켜 그래핀을 제조하는 대부분의 방법들은 화학기상증착법을 사용하거나, 그래핀 자체를 원료물질로 사용하여 질소 및 붕소를 함께 도핑시키는 방법에 관한 것이다.

[0019] 이에, 본 발명자들은 화학적 박리법을 바탕으로 그래핀 옥사이드를 제조하는 방법을 연구하던 중, 화학적 박리법을 이용하여 그래핀 옥사이드를 제조한 후, 이를 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)으로 환원시켜 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제조하는 방법이 그래핀 내에 붕소를 도핑시킴과 동시에 산소작용기를 포함하는 물질들을 환원시킬 수 있고, 상기 방법을 통해 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 초고용량 축전지의 전극 소재로써 우수한 비정전용량을 갖는 것을 알아내고 본 발명을 완성하였다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0020] (특허문헌 0001) 대한민국공개특허 제10-2010-0136576호(공개일: 2010.12.29)
(특허문헌 0002) 대한민국공개특허 제10-2011-0110067호(공개일: 2011.10.06)
(특허문헌 0003) 대한민국공개특허 제10-2011-0138611호(공개일: 2011.12.28)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0021] 본 발명의 목적은 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제공하는 데 있다.

[0022] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법을 제공하는 데 있다.

과제의 해결 수단

[0023] 상기 과제를 해결하기 위해, 본 발명은 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드와 함께, 이의 제조방법으로서,

[0024] 그라파이트 옥사이드를 수성용매하에서 박리하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 단계(단계 1);

[0025] 상기 분산용액에 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)을 첨가하여 환류시키는 단계(단계 2); 및

[0026] 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계(단계 3)를 포함하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

[0027] 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 붕소를 0.1 ~ 1.0 원자%로 포함함으로써 우수한 정전용량을 나타내어 축전지 전극소재로서 활용될 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 산화 및 초음파 조사로 인해 sp^2 혼성 탄소가 파괴된 그래핀 옥사이드를 보레인-테트라하이드

드로퓨란으로 환원시킴으로써 그래핀 옥사이드 표면에 결합된 산소를 포함하는 작용기를 효과적으로 환원시킴과 동시에 붕소를 미량 도핑시킬 수 있고, 상대적으로 저렴한 그래파이트 옥사이드를 출발물질로 사용함에도 불구하고 그래핀과 동등한 성능을 나타낼 뿐만 아니라 우수한 비정전용량을 갖는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 대량으로 수득할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0028] 도 1은 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 주사전자현미경(SEM)으로 촬영한 사진이다.

도 2는 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 X-선 광전자 분광 스펙트럼을 나타낸 것이다.

도 3은 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 열중량 분석 결과이다.

도 4는 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 X-선 회절분석 결과이다.

도 5는 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 2전극 시스템을 이용하여 축전지 전극으로서의 성능을 평가한 결과이다.

도 6은 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 3전극 시스템을 이용하여 축전지 전극으로서의 성능을 평가한 결과이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0029] 본 발명을 설명하기에 앞서, 본 명세서에서 사용되는 용어 중 그래파이트 옥사이드, 그래핀 옥사이드 및 환원된 그래핀 옥사이드는 다음과 같이 정의한다.

[0030] 본 명세서에서 "그래파이트 옥사이드(graphite oxide)"란 화학적 합성법을 이용하여 흑연을 강산 또는 산화제로 산화시킨 것으로서 친수성이 강하여, 면과 면 사이에 물분자와 같은 친수성 용매가 용이하게 삽입되어 면간 간격이 6 ~ 12 Å 으로 늘어난 물질이다.

[0031] 또한, 본 명세서에서 "그래핀 옥사이드(graphene oxide)"란 상기 그래파이트 옥사이드를 장시간 교반 또는 초음파를 조사하여 그래파이트 옥사이드를 구성하는 각각의 면을 박리시킨 것으로서, 상기 그래핀 옥사이드는 표면에 수산기, 에폭시기, 카복실기, 케톤기 등과 같은 친수성 물질들이 결합되어 있는 물질이다.

[0032] 나아가, 본 명세서에서 "환원된 그래핀 옥사이드(reduced graphene oxide)"란 상기 그래핀 옥사이드를 환원시킨 물질이다.

[0033] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.

[0034] 본 발명은 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제공한다.

[0035] 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 붕소가 0.1 ~ 1.0 원자%로 포함되어 있어 축전기의 전극소재로 사용될 수 있다. 본 발명에 따른 실험예 6 ~ 8을 참조하면, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 종래 우수한 비정전용량 값을 갖는 하이드라진을 환원제로 사용하여 환원시킨 그래핀 옥사이드보다 높은 정전용량을 가지므로 축전지의 전극 소재로 사용될 수 있다.

- [0036] 또한, 본 발명은,
- [0037] 그래파이트 옥사이드를 수성용매하에서 박리하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 단계(단계 1);
- [0038] 상기 분산용액에 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)을 첨가하여 환류시키는 단계(단계 2); 및
- [0039] 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계(단계 3)를 포함하는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법을 제공한다.
- [0040] 본 발명의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법을 각 단계별로 이하에서 더욱 상세히 설명한다.
- [0041] 먼저, 본 발명에 따른 제조방법에 있어서, 상기 단계 1은 그래파이트 옥사이드를 수성용매하에서 박리하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 단계이다.
- [0042] 구체적으로, 상기 단계 1은 원료물질로서 흑연을 사용할 수 있다. 상기 흑연을 강산 또는 산화제를 이용하여 산화시키면 그래파이트 옥사이드를 얻을 수 있다.
- [0043] 흑연이 그래파이트 옥사이드로 산화되는 과정에서 흑연을 구성하는 면과 면 사이에 물분자와 같은 친수성 용매가 삽입될 수 있다. 삽입된 용매는 상기 흑연을 구성하는 면과 면사이의 간격을 확장시키게 된다. 그 결과 각각의 면을 용이하게 박리시켜 그래핀 옥사이드를 얻을 수 있다. 상기 그래파이트 옥사이드는 위와 같은 방식으로 각각의 면을 용이하게 박리시키기 위해 수성용매에 하에서 박리시킨다.
- [0044] 본 발명에 따른 상기 단계 1에서, 상기 그래파이트 옥사이드를 박리시키기 위한 수성용매로는 물, 에탄올, 디메틸포름아마이드(dimethylformamide, DMF), 디메틸설폭사이드(dimethylsulfoxide, DMSO), 테트라하이드로퓨란(tetrahydrofuran, THF), 아세톤 등을 단독으로 또는 그 이상을 혼합하여 사용할 수 있다. 그러나, 그래파이트 옥사이드의 산소를 포함하는 작용기와 결합하여 각각의 면을 용이하게 박리시킬 수 있는 친수성 용매라면 이에 제한되지 않는다. 또한, 상기 그래파이트 옥사이드를 박리시키는 방법으로는 초음파 조사 또는 교반을 사용할 수 있으나, 이에 제한되지 않는다.
- [0045] 본 발명에 따른 상기 단계 1은 수성용매에 첨가된 그래파이트 옥사이드 입자가 보이지 않을 때까지 초음파를 조사하거나 교반시켜 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하는 것이 바람직하다. 상기 단계 1의 초음파 조사 또는 교반에 의해, 그래파이트 옥사이드를 구성하는 면들을 박리시킬 수 있으며, 상기 단계 1의 분산용액의 분산정도는 박리정도를 예측할 수 있는 척도가 될 수 있다.
- [0046] 다음으로, 본 발명에 따른 상기 단계 2는 상기 단계 1에서 제조된 분산용액에 보레인-테트라하이드로퓨란(borane-THF)을 첨가하여 환류시키는 단계이다.
- [0047] 상기 단계 1을 통해 수성용매에 분산시켜 제조된 그래핀 옥사이드는 표면에 수산기, 에폭시기, 카르복실기 등과 같은 친수성 작용기를 포함한다. 상기 그래핀 표면에 결합된 친수성 작용기들은 본래의 그래핀 자체의 물리적 성질을 저하시키므로, 상기 친수성 작용기를 환원시켜 그래핀의 성질을 복원시키는 것은 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 제조방법의 핵심이라고 할 수 있다.
- [0048] 상기 보레인-테트라하이드로퓨란은 그래핀 옥사이드 표면에 결합된 산소를 포함하는 작용기를 갖는 물질들을 환

원시킴으로써 그래핀 자체의 물리적 성질의 저하를 방지할 수 있을 뿐만 아니라, 그래핀 옥사이드에 붕소를 미량 도핑시킴으로써 제조되는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 전기적특성을 향상시킬 수 있다.

- [0049] 또한, 상기 보레인-테트라하이드로퓨란은 기포방지를 위해 상기 단계 1에서 제조된 그래핀 옥사이드가 분산된 용액에 가능한 한 서서히 적가하는 것이 바람직하다.
- [0050] 본 발명에 따른 상기 단계 2에서 보레인-테트라하이드로퓨란은 상기 단계 1의 그라파이트 옥사이드의 총 중량을 기준으로 280 ~ 1400 중량%로 첨가될 수 있다. 상기 보레인-테트라하이드로퓨란이 그라파이트 옥사이드의 총 중량에 대하여 280 중량% 미만으로 첨가되는 경우에는 환원반응이 잘 수행되지 않는 문제가 있을 수 있고, 1400 중량%를 초과하여 첨가되는 경우에는 보레인-테트라하이드로퓨란의 과량 첨가로 인한 기체발생으로 인한 안전의 문제가 있을 수 있다.
- [0051] 본 발명에 보레인-테트라하이드로퓨란이 첨가된 그래핀 옥사이드 분산용액을 환류시키는데 있어서, 상기 환류는 오일조 내 수성용매의 휘발과 응축이 반복되어 오일조의 온도가 일정온도로 유지될 수 있게 하고, 보레인-테트라하이드로퓨란과 그래핀 옥사이드가 지속적으로 접촉할 수 있게 한다. 상기 환류를 통해 그래핀 옥사이드 내의 산소를 포함하는 작용기들을 환원시킬 수 있으며, 이와 동시에 그래핀 옥사이드에 붕소를 도핑시킬 수 있다. 따라서, 상기 단계 2는 본 발명의 그래핀 옥사이드 제조방법에 있어서 매우 중요한 단계라고 할 수 있다.
- [0052] 이러한 관점에서 상기 환류는 100 ~ 130 ℃ 로 예열된 오일조에서 48 시간 이상 수행되는 것이 바람직하며, 96 시간 이상 수행되는 것이 더 바람직하다. 상기 반응의 완결은 상기 환류시킨 용액에 검은색 고체가 침전되어 용액부분이 투명해지는 것으로 확인할 수 있다. 반응이 완결되면 다음 단계를 진행한다.
- [0053] 다음으로, 본 발명에 따른 상기 단계 3은 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계이다.
- [0054] 본 발명에 있어서, 상기 단계 3은 상기 단계 2에서 환원된 그래핀 옥사이드 용액을 원심분리와 같은 외력을 가하지 않고 상온으로 서서히 냉각시켜 침전되는 생성물을 얻는 것이 바람직하다. 만약, 외력에 의해 침전시키는 경우에는 환원된 그래핀 옥사이드가 반데르발스 힘에 의해 과도하게 응집되는 문제가 있다.
- [0055] 다음으로, 본 발명은 상기 단계 3 이후에 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 회수하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0056] 상기 회수는 상기 단계 3에서 상기 단계 2의 용액을 냉각시킴으로써 침전시킨 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 여과하고 세척한 후, 건조시키는 단계를 포함할 수 있다.
- [0057] 본 발명에 있어서, 상기 여과는 유리필터 등을 사용할 수 있으나, 당업계에서 사용되는 통상의 여과방법, 장치 등을 이용하여 수행될 수 있다. 상기 여과된 생성물은 본 발명의 제조과정 중에 사용되는 수성용매, 보레인-테트라하이드로퓨란을 포함하거나 중간생성물과 같은 불순물을 포함할 수 있다.
- [0058] 따라서, 상기 여과된 생성물을 세척하는 과정을 더 포함함으로써 제조되는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 순도를 높일 수 있다. 상기 세척은 특별히 제한은 없으나, 상기 단계 1에서 사용된 수성용매와 동일한 용매를 사용하는 것이 바람직하다.

- [0059] 상기 세척된 생성물은 여전히 수성용매 등과 같은 잔여물을 포함하고 있다. 따라서, 상기 회수단계는 잔여물을 제거하기 위하여 세척된 생성물을 건조시키는 단계를 더 포함할 수 있다. 상기 건조는 세척된 생성물을 공기 중에서 예비 건조시킨 후, 진공조건에서 최종 건조시키는 것이 바람직하다. 예를 들면, 상기 건조는 세척된 생성물을 1 시간 동안 자연건조 시킨 후, 다시 진공조건에서 12 시간 동안 최종 건조시켜 최종생성물인 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 수득할 수 있다.
- [0060] 나아가, 상기 회수단계의 여과, 세척 및 건조는 환원된 그래핀 옥사이드가 반데르발스 힘에 의해 과도하게 응집할 수 있다. 따라서, 이를 방지하기 위하여 상기 회수단계는 생성물을 여과한 후, 상기 여과된 생성물을 여과기 상에서 그대로 세척하고 건조할 수 있다.
- [0061] 본 발명은 또한 상기 제조방법으로 제조되는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제공한다.
- [0062] 본 발명에 따라 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 탄소/산소 원자비가 4.2 ~ 7.8이다. 상기 탄소/산소 원자비는 그래핀 옥사이드 표면에 부착된 산소 작용기들의 환원정도를 판단할 수 있는 값이다. 예를 들면, 탄소/산소 원자비가 약 1.3 인 그래핀 옥사이드(비교예 1)와 비교하면 본 발명에 따라 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드(실시예 1) 표면에 부착된 산소 작용기들이 효과적으로 환원되었음을 알 수 있다 (실험예 2 참조).
- [0063] 이하, 본 발명의 실시예를 통해 더욱 상세히 설명한다. 단, 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [0064] <실시예 1> 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조
- [0065] 단계 1. 그래핀 옥사이드 분산용액 제조
- [0066] 250 ml 둥근 플라스크에 그라파이트 옥사이드 500 mg, 물 167 ml 및 교반용 막대자석(stirring bar)를 넣은 후, 초음파 세정기(ultrasonic cleaner, 제조사:Branson Ultrasonics Cooperation, 제조원:멕시코)를 이용하여 그래핀 옥사이드 분산용액을 제조하였다.
- [0067] 단계 2. 보레인-테트라하이드로푸란을 첨가하여 환류시키는 단계
- [0068] 상기 단계 1에서 제조된 그래핀 옥사이드 분산용액을 교반하면서 10.68 M 농도의 보레인-테트라하이드로푸란(Sigma Adrich) 용액 1.56 ml을 천천히 첨가하였다. 상기 보레인-테트라하이드로푸란 용액이 첨가된 그래핀 옥사이드 분산용액을 130 ℃로 예열된 오일조에 넣고 96시간 동안 환류시켰다.
- [0069] 단계 3. 상기 단계 2의 용액을 냉각시키는 단계
- [0070] 상기 단계 2에서 환류시킨 용액을 상온으로 서서히 냉각시켜 용액 내 침전물의 형태로 생성물을 얻었다.
- [0071] 단계 4. 상기 단계 3의 생성물을 정제하는 단계
- [0072] 상기 단계 3의 용액을 유리여과기(glass filter)를 사용하여 생성물을 여과시키고, 상기 유리여과기에 여과된 생성물을 100 ml의 물로 3 회 이상 세척하였다.
- [0073] 상기 유리여과기상에서 세척된 생성물을 그대로 1 시간 동안 자연건조시킨 후, 진공이 형성된 분위기에서 12 시간 동안 건조시켜 도 1에 나타난 바와 같이 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제조하였다.

- [0074] <비교예 1> 그래핀 옥사이드의 제조
- [0075] 실시예 1의 단계 2 내지 3을 거치지 않은 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법을 수행하여 그래핀 옥사이드를 제조하였다.
- [0076] <실험예 1> 본 발명에 따른 그래핀 옥사이드의 X-선 광전자 분광기 분석
- [0077] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 환원정도를 알아보기 위하여 X-선 광전자 분광기(X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS, 제조사:Thermo Fisher Scientific, 제조원:영국)를 이용하여 분석하였고, 그 결과를 도 2에 나타내었다.
- [0078] 도 2를 참조하면, 본 발명에 따른 실시예 1의 보레인-테트라하이드로퓨란 용액으로 환원시켜 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 산소를 포함하는 작용기에 대한 피크(286 ~ 290 eV)가 거의 나타나지 않음을 알 수 있다.
- [0079] 이와 달리, 비교예 1의 그라파이트 옥사이드 용액에 초음파를 조사하여 제조된 그래핀 옥사이드는 sp^2 혼성 탄소에 해당하는 피크(284.6 eV)가 나타났고, 수산기, 에폭시, 케톤계 및 카르복실기와 같은 산소가 포함된 작용기들에 대한 피크(286 ~ 290 eV)가 상대적으로 높음을 나타내었다.
- [0080] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 환원상태가 우수한 그래핀 옥사이드를 제조할 수 있음을 알 수 있다.
- [0081] <실험예 2> 본 발명에 따른 그래핀 옥사이드의 원소분석
- [0082] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 환원정도를 알아보기 위하여 원소분석 실험을 수행하였고, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.
- [0083] 상기 원소분석 실험은 원소분석 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 수소, 탄소, 산소의 질량을 측정하였다.
- [0084]

표 1

실시예 1		비교예 1	
붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드	중량%	그래핀 옥사이드	중량%
수소	1.423	수소	3.043
탄소	70.53	탄소	44.81
산소	22.17	산소	45.82
전체합계	94.12	전체합계	93.79
탄소/산소 원자비	4.238	탄소/산소 원자비	1.303

- [0086] 상기 표 1로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 환원상태가 우수한 그래핀 옥사이드를 제조할 수 있음을 알 수 있다.
- [0087] <실험예 3> 본 발명에 따른 그래핀 옥사이드의 열중량 분석
- [0088] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 환원정도를 알아보기 위하여 열중량 분석(Thermogravimetry Analysis, TGA, 제조사:NETZSCH, 제조원:독일) 실험을 수행하였고, 그 결과를 도 3에 나타내었다.
- [0089] 도 3을 참조하면, 본 발명에 따른 실시예 1의 보레인-테트라하이드로퓨란 용액으로 환원시켜 제조된 붕소가 도

평된 환원된 그래핀 옥사이드는 전체 온도범위에 걸쳐 질량이 서서히 감소함을 알 수 있다.

- [0090] 이와 달리, 그래파이트 옥사이드 용액에 초음파를 조사하여 제조된 비교예 1의 그래핀 옥사이드는 100 ℃ 이하, 150 ~ 200 ℃ 및 450 ~ 600 ℃에서 질량이 급격히 감소하는 것을 알 수 있다.
- [0091] 비교예 1의 그래핀 옥사이드의 상기 온도 구간에서의 질량감소는 다음과 같이 설명될 수 있다. 100 ℃ 이하에서는 그래핀 옥사이드 내 존재하는 물 분자들이 증발하면서 그래핀 옥사이드의 질량이 감소되는 것으로 판단되고, 150 ~ 200 ℃ 구간에서는 그래핀 옥사이드 내 반응성이 좋은 산소를 포함하는 작용기들이 열분해 되면서 그래핀 옥사이드의 질량이 감소된 것으로 판단된다.
- [0092] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 환원상태가 우수한 그래핀 옥사이드를 제조할 수 있음을 알 수 있다.
- [0093] <실험예 4> 본 발명에 따른 그래핀 옥사이드의 X-선 회절분석
- [0094] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 및 비교예 1에서 제조된 그래핀 옥사이드의 환원정도를 알아보기 위하여 X-선 회절분석기(X-ray diffraction, XRD, 제조사:Rigaku, 제조원:일본)를 이용하여 측정하였고, 그 결과를 도 4에 나타내었다.
- [0095] X-선 회절분석에 있어서, 2θ 값은 그래핀의 층간 거리에 관한 간접적인 정보를 제공할 수 있는 격자거리 d (d -spacing)에 관한 정보를 제공한다. 즉, 2θ 값이 커질수록 격자거리 d 는 작아지므로 그래핀의 층간 거리도 가까워짐을 알 수 있다.
- [0096] 도 4를 참조하면, 본 발명에 따른 보레인-테트라하이드로퓨란 용액으로 환원시켜 제조된 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 d 는 약 0.5 nm로 측정되었다.
- [0097] 반면, 비교예 1의 그래파이트 옥사이드 용액에 초음파를 조사하여 제조된 그래핀 옥사이드의 d 는 약 0.8 ~ 0.9 nm로 측정되었다. 흑연의 d 가 약 0.334 nm인 것으로 판단할 때, 비교예 1의 그래핀 옥사이드는 산화반응 및 초음파 조사에 의해 친수성 작용기 및 물 분자들이 수소 결합을 통해 그래핀 상 하면 상에 결합함으로써 그래핀의 층간 거리를 멀어지게 한 것을 알 수 있다.
- [0098] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 그래핀 옥사이드 내부에 포함된 산소를 포함하는 작용기를 효과적으로 환원시킬 수 있음을 알 수 있다.

- [0099] <실험예 5> 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 내 포함된 붕소의 함량 측정
- [0100] 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드 내 포함된 붕소의 함량을 측정하기 위하여 X-선 광전자 분광기, 에너지 분산형 X선 분석기(Energy Dispersive X-ray spectroscopy, 이하, EDX, 제조사:HORIBA, 제조원:일본) 및 유도결합 플라즈마 질량분석법(Inductively coupled plasma - mass spectroscopy, 이하, ICP-MS, 제조사:Thermo Fisher Scientific, 제조원:독일)를 이용하여 분석하였고, 그 결과를 표 2에 나타내었다.
- [0101] 환원된 그래핀 옥사이드 내 포함된 붕소의 함량 측정방법에 있어서, ICP-MS는 상기 측정방법들 중 가장 신뢰도가 높은 분석 방법으로서, 원자의 고유한 질량 차이를 이용하여 극미량의 원소를 분석하는데 주로 사용되고 있는 방법이다. 본 실험에서 상기 ICP-MS 외에 X-선 광전자 분광기와 EDX로 측정된 값은 환원된 그래핀 옥사이드 내에 붕소가 도핑되어 있다는 것을 확인할 수 있는 자료로서 활용된다.

표 2

측정대상	붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드		
	X-선 광전자 분광기	EDX	ICP-MS

	측정성분	단위(원자%)	측정성분	단위(원자%)	측정성분	단위(중량%)
			B	17.80	B	0.111
	B1s	0.72	C	70.43		
	C1s	80.23	O	11.66		
	O1s	19.05	S	0.11		

- [0103] 표 2를 참조하면, 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 붕소를 포함하고 있음을 알 수 있다. 또한, 상기 ICP-MS 측정결과로부터 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 붕소를 0.111 중량% 포함하고 있음을 알 수 있다.
- [0104] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 그래핀 옥사이드 내부에 포함된 산소를 포함하는 작용기를 효과적으로 환원시킬 뿐만 아니라 동시에 붕소를 도핑시킬 수 있음을 알 수 있다.
- [0105] <실험예 6> 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능 평가 실험 1
- [0106] 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능을 평가하기 위하여, 2전극 시스템을 이용하여 실험하였고 그 결과를 도 5에 나타내었다.
- [0107] 상기 실험은 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 집전체로 사용하여 축전지를 제조한 후, 2전극 시스템을 이용하여 상기 축전지에 전압을 인가시켜 6 M의 수산화칼륨(KOH)용액을 전해질로 사용했을 때 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 전기화학적 특성을 평가하였다.
- [0108] 60 중량%의 폴리테트라 플루오로에틸렌(Polytetrafluoroethylene, PTFE) 수용액과 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 막자사발을 이용하여 균일하게 혼합하였다(혼합비: 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드:폴리테트라 플루오로에틸렌=95 중량%:5 중량%). 상기 혼합액으로 40 ~ 50 μm 두께의 필름을 제조하고, 상기 필름을 0.5 inch 반지름의 원형으로 편지하여, 이 원형 샘플을 100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 건조시켜 전극으로 제조하였다. 상기와 같은 방법으로 두 개의 원형 전극을 제조하고, 상기 두 개의 원형전극과 두 개의 집전장치(current collector), 하나의 세퍼레이터(separator)로 테스트 셀을 만들었다. 상기 테스트 셀을 두 개의 스테인리스 강으로 제조된 측정 틀 안에 넣고 측정하였다.
- [0109] 도 5를 참조하면, 높은 주사 속도(scan rate)인 100 mV/s에서 순환 전압 전류(cyclo-voltametry, CV) 곡선이 거의 사각형 형태로 나오는 것을 알 수 있다. 또한, 상기 주사 속도 보다 낮은 주사 속도일수록 순환 전압 전류 곡선이 사각형 형태에서 점차 벗어나는 것을 알 수 있다.
- [0110] 이로부터, 주사 속도에 따른 순환 전압 전류 곡선의 형태로부터 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 포함하는 전극은 표면에 전하가 흡착되면서 에너지가 저장되는 전기 이중층 캐패시터가 존재함을 거시적으로 판단할 수 있다.
- [0111] <실험예 7> 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능 평가 실험 2
- [0112] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능을 평가하기 위하여, 3전극 시스템을 이용하여 실험하였고 그 결과를 도 6에 나타내었다.
- [0113] 상기 실험은 본 발명에 따른 실시예 1의 그래핀 옥사이드를 집전체로 사용하여 축전지를 제조한 후, 3전극 시스템을 이용하여 상기 축전지에 전압을 인가시켜 6 M의 수산화칼륨(KOH)용액을 전해질로 사용했을 때 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 전기화학적 특성을 평가하였다.
- [0114] 60 중량%의 폴리테트라 플루오로에틸렌(Polytetrafluoroethylene, PTFE) 수용액과 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 막자사발을 이용하여 균일하게 혼합하였다(혼합비: 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드:폴리테트라 플루오로에틸렌=95 중량%:5 중량%). 상기 혼합액을 1 cm $\times$ 1 cm 크기의 니켈 판 상에 도포한 후 누른 후, 100 $^{\circ}\text{C}$ 에서 건조시켜 전극을 제조하였다. 이때, 3전극 시스템은 백금 시트와 포화 칼로멜 전극을 각각 상대 전극과 기준 전극으로 사용하였다.
- [0115] 도 6을 참조하면, 낮은 주사 속도일수록 순환 전압 전류 곡선이 넓은 굴곡(broad hump)을 나타냄을 알 수 있다. 상기 굴곡으로부터 전극 표면에 화학 작용기들의 유도 전류 반응을 통해서(산화 환원 반응) 에너지가 저장되는

것을 알 수 있다.

[0116] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 포함하는 전극은 표면에 전하가 흡착되면서 에너지가 저장되는 기작과 표면에서 산화 환원 반응에 의해 에너지가 저장되는 기작이 모두 동시에 존재하는 것을 알 수 있다.

[0117] <실험예 8> 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능 평가 실험 3

[0118] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능을 평가하기 위하여, 상기 실험예 6과 실험예 7에서의 2전극 시스템과 3전극 시스템을 이용하여, 전류 밀도를 변화시켜 이에 따른 축전량의 변화를 각각 측정하였고, 이 결과를 하기 표 3에 나타내었다.

표 3

전류밀도	측정방법	
	2전극시스템(축전량, F/g)	3전극시스템(축전량, F/g)
0.1 A/g	200	193
0.5 A/g	177	165
1 A/g	160	155
3 A/g	146	144

[0120] 상기 표 3을 참조하면 본 발명에 따른 실시예 1의 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 2전극 시스템에서 전류밀도가 0.1 A/g 일 때 축전량이 200 F/g 이며, 전류밀도가 높아져도 축전량이 크게 저하되지 않고 잘 유지됨을 알 수 있다. 또한, 3전극 시스템에서도 이와 비슷한 기작을 나타냄을 알 수 있다.

[0121] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드는 종래 알려진 우수한 비정전용량 값을 갖는 하이드라진을 환원제로 사용하여 환원시킨 그래핀 옥사이드(CReGO)보다 30 ~ 40 % 높은 정전용량을 가지므로 초 고용량 축전지의 전극 소재로써 우수한 성능을 나타냄을 알 수 있다.

[0122] <실험예 9> 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지 전극으로서의 성능 평가 실험 4

[0123] 본 발명에 따른 실시예 1에서 제조된 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 축전지로서의 성능을 평가하기 위하여, BET(Brunauer-Emmett-Teller) 분석법을 이용하여 표면적을 측정하였다.

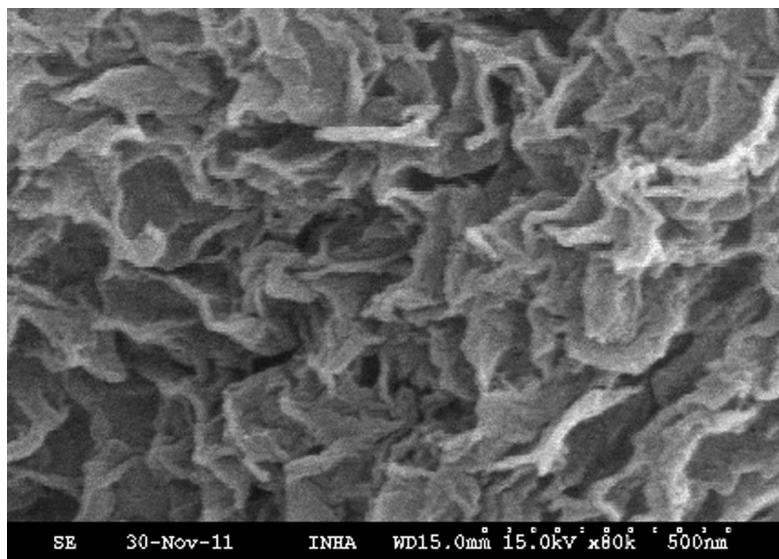
[0124] 축전지의 전극소재는 넓은 표면적을 갖는 것이 중요하다. 축전지는 전극 표면에 전자를 흡착하여 충전되므로, 축전지를 제조하는 데 있어서 넓은 표면적을 갖는 전극소재를 사용하는 것은 중요하다고 할 수 있다.

[0125] 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 표면적은 $466.36 \text{ m}^2/\text{g}$ 로 측정되었다. 종래 축전지 전극 소재로 사용되는 그래핀의 표면적이 약 $700 \text{ m}^2/\text{g}$ 이나, 그래핀 재료들의 표면적이 대부분 $300 \sim 700 \text{ m}^2/\text{g}$ 인 것으로 판단할 때, 본 발명의 그래핀 옥사이드는 축전지의 전극소재로서 충분히 사용될 수 있음을 알 수 있다.

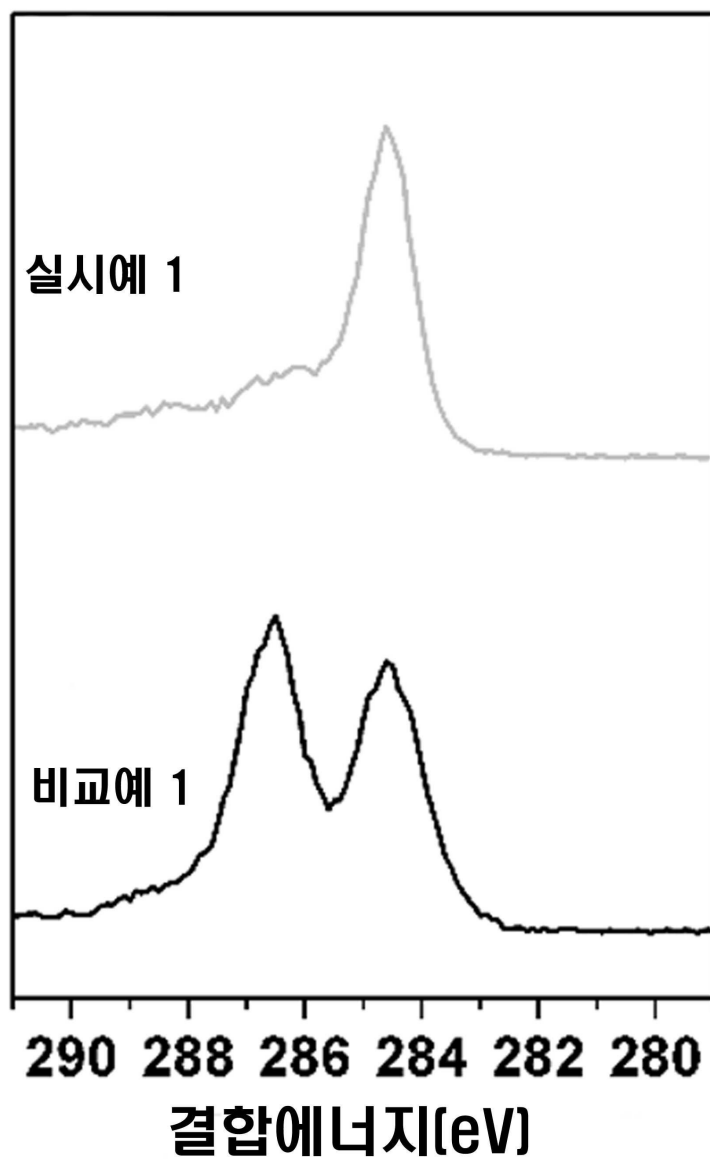
[0126] 이로부터, 본 발명에 따른 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드의 제조방법은 저렴한 그라파이트 옥사이드로부터 종래 축전지의 전극 소재로써 사용되는 그래핀과 동등한 성능을 갖는 붕소가 도핑된 환원된 그래핀 옥사이드를 제조할 수 있음을 알 수 있다.

도면

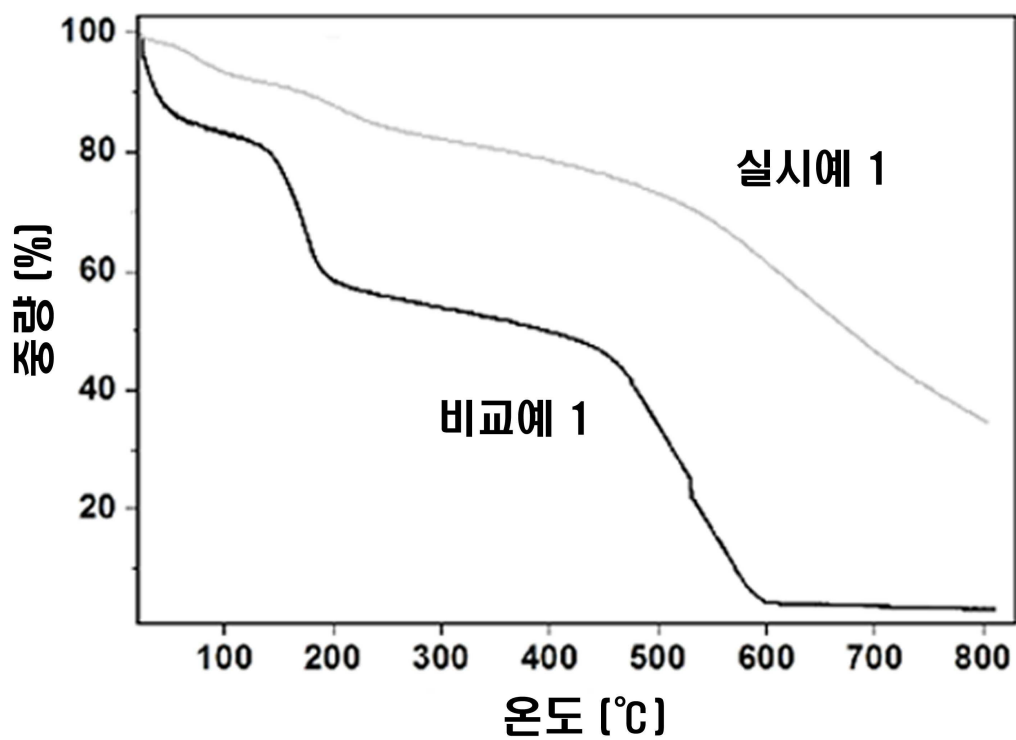
도면1



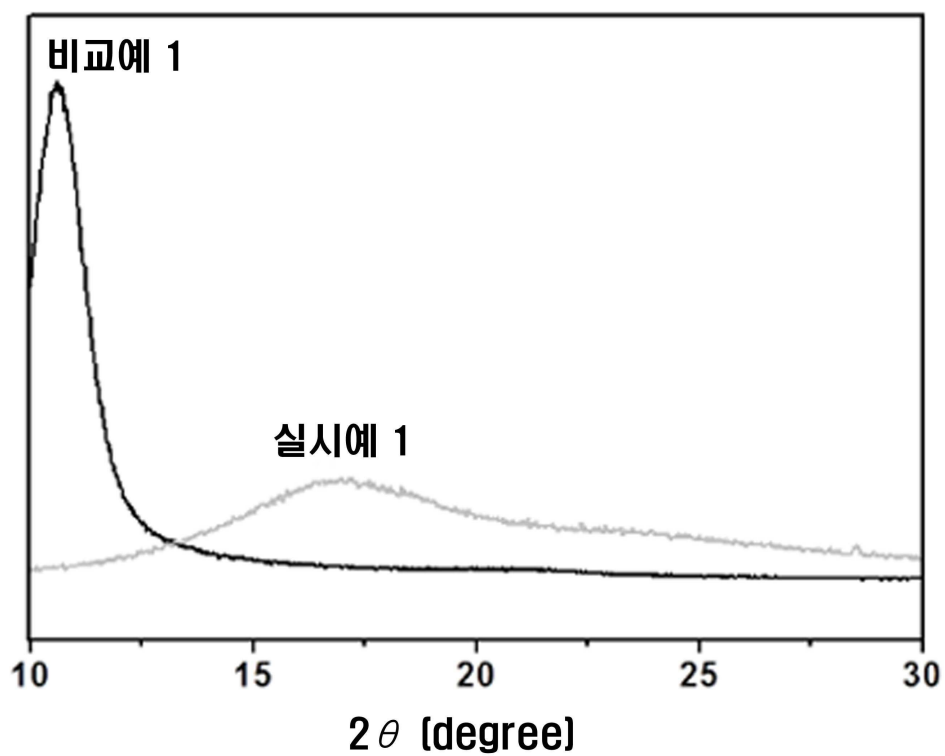
도면2



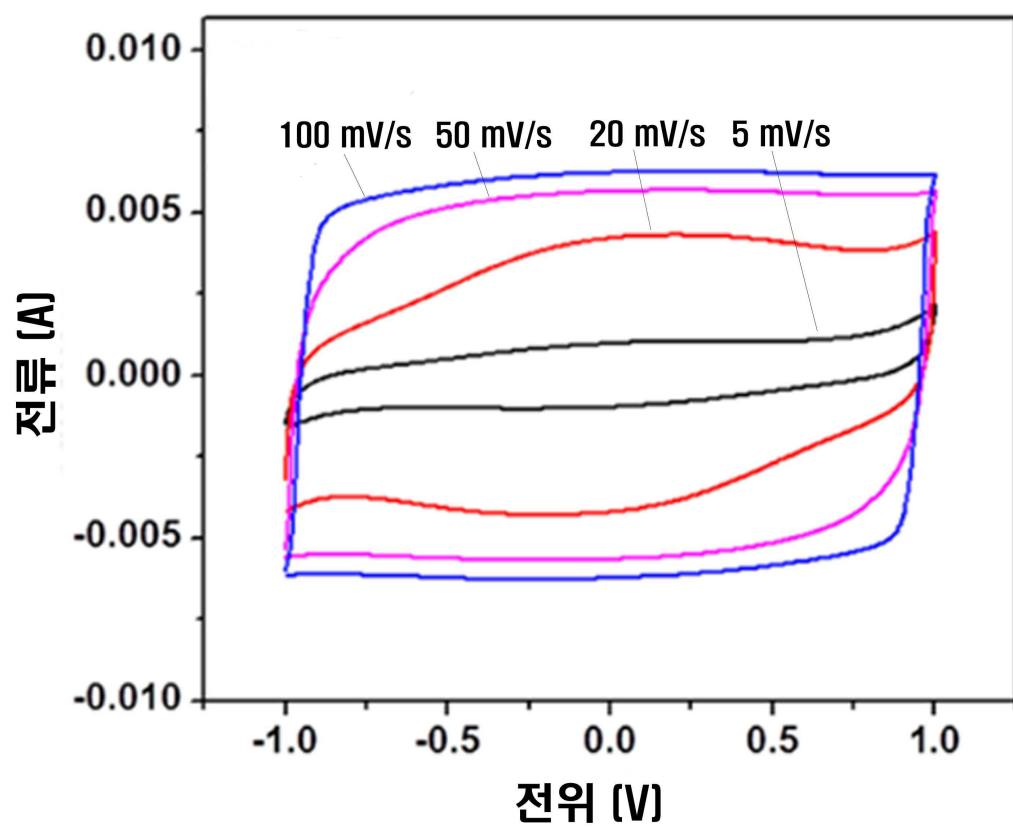
도면3



도면4



도면5



도면6

